

**UNIVERSITÉ PAUL CEZANNE AIX-MARSEILLE III**

**THESE**

présentée et soutenue publiquement  
par **Bertrand BERTUSSI** le **12 Juillet 2005**

pour obtenir le grade de

DOCTEUR EN SCIENCES DE L'UNIVERSITÉ PAUL CEZANNE  
AIX-MARSEILLE III

**ETUDE DES MÉCANISMES INITIATEURS DE  
L'ENDOMMAGEMENT LASER DANS LES COMPOSANTS  
OPTIQUES: VERS UNE AMELIORATION DE LA TENUE AU  
FLUX**

Spécialité: Optique, Image et Signal  
École Doctorale: Physique, Sciences de la Matière

**Rapporteurs:**

Mme M. FORET  
M. F. VALLEE

**Jury:**

Mme M. COMMANDRE (Directrice de thèse)  
Mme M. FORET  
M. J. LAFAIT  
M. J-Y. NATOLI (Directeur de thèse)  
M. H. PIOMBINI  
M. M. SENTIS  
M. M.J. SOILEAU  
M. F. VALLEE



# Table des matières

<b>Remerciements</b>	<b>1</b>
<b>Introduction</b>	<b>3</b>
<b>1 Lasers de Puissance et endommagement laser</b>	<b>7</b>
1.1 Les lasers de Puissance . . . . .	8
1.1.1 La puissance laser: régime continu ou régime pulsé? . . . .	8
1.1.2 Les lasers continus . . . . .	9
1.1.3 Les lasers impulsionsnels . . . . .	9
1.2 Interaction laser-matière . . . . .	10
1.2.1 Interaction thermique . . . . .	11
1.2.2 Interaction photoélectronique . . . . .	11
1.2.3 Interaction mécanique . . . . .	11
1.3 Applications courantes des lasers de puissance . . . . .	12
1.3.1 Micro-usinage . . . . .	12
1.3.2 Ablation laser des matériaux . . . . .	14
1.3.3 Nanophotonique . . . . .	15
1.3.4 Chirurgie, Dermatologie et Ophtalmologie . . . . .	15
1.4 Le Laser Mégajoule (LMJ): un laser de puissance particulier . . .	16
1.5 Problématiques liées à l'utilisation de ces lasers de puissance: l'en- dommagement laser des composants optiques . . . . .	18
<b>2 Caractérisation de la tenue au flux laser des matériaux optiques</b>	<b>21</b>
2.1 Méthodologie mise en oeuvre pour l'étude du phénomène d'endom- magement laser . . . . .	22
2.1.1 Endommagement fonctionnel et endommagement physique	22
2.1.2 Caractérisation expérimentale de la tenue au flux des ma- tériaux optiques . . . . .	23
2.2 Etude bibliographique de l'influence des paramètres de tirs sur la mesure de l'endommagement laser . . . . .	28
2.2.1 Longueur d'onde . . . . .	28
2.2.2 Taille du faisceau d'irradiation . . . . .	28
2.2.3 Durée d'impulsion . . . . .	29

2.2.4	Fréquence de tir . . . . .	30
2.3	Un banc dédié à la mesure de tenue au flux laser des optiques . .	31
2.3.1	Présentation du dispositif expérimental . . . . .	31
2.3.2	Contrôle expérimental des conditions de tir . . . . .	32
2.3.3	Détection de l'endommagement du matériau . . . . .	37
2.4	Exemples de caractérisations de tenue au flux laser de matériaux optiques . . . . .	42
2.4.1	Cas d'un matériau amorphe: la silice Suprasil . . . . .	42
2.4.2	Cas de cristaux de KTP (origine: Cristal Laser - Nancy) . .	44
2.5	Conclusion . . . . .	46
<b>3</b>	<b>Origine de l'endommagement laser dans les matériaux optiques</b>	<b>49</b>
3.1	Validation de l'hypothèse des centres précurseurs de l'endommagement laser . . . . .	50
3.1.1	Cas du matériau optique parfait . . . . .	50
3.1.2	Un modèle statistique au service de la compréhension des phénomènes d'endommagement laser . . . . .	51
3.1.3	Mise en évidence expérimentale par méthode globale: Morphologie des endommagements . . . . .	56
3.1.4	Mise en évidence expérimentale par méthode statistique: Effet de la taille du spot d'irradiation . . . . .	58
3.2	État de l'art sur l'origine des centres précurseurs de l'endommagement laser sous irradiation unique . . . . .	61
3.2.1	Défauts de structure du matériau . . . . .	61
3.2.2	Contaminants issus de la fabrication et de l'utilisation des optiques . . . . .	62
3.2.3	Effet d'autofocalisation dans les matériaux optiques . . .	65
3.3	Influence du polissage sur la tenue au flux laser des composants optiques . . . . .	66
3.3.1	Introduction . . . . .	66
3.3.2	Description des procédés de polissage . . . . .	67
3.3.3	Caractérisation des particules présentes dans les liquides de polissage . . . . .	69
3.3.4	Corrélation entre les précurseurs de l'endommagement laser en surface de lames de silice et les impuretés présentes dans les liquides de polissage associés . . . . .	71
3.4	Conclusion . . . . .	73
<b>4</b>	<b>Détection non-destructive des centres précurseurs de l'endommagement laser</b>	<b>75</b>
4.1	État de l'Art concernant la détection non destructive des défauts dans les matériaux optiques . . . . .	76
4.1.1	La déflexion photothermique . . . . .	76

4.1.2	Application de l'effet photothermique à la détection des centres précurseurs de l'endommagement laser . . . . .	78
4.1.3	Bilan sur la détection des défauts absorbants responsables de l'endommagement laser . . . . .	80
4.2	Détection expérimentale des défauts responsables de l'endommagement laser . . . . .	80
4.2.1	Résolution spatiale . . . . .	80
4.2.2	Microscope photothermique haute résolution 3D . . . . .	83
4.2.3	Application à la détection de particules absorbantes isolées de taille nanométrique . . . . .	85
4.3	Conclusion . . . . .	89
<b>5</b>	<b>Etude des mécanismes initiateurs de l'endommagement laser</b>	<b>91</b>
5.1	Introduction . . . . .	92
5.2	Contexte de l'étude . . . . .	93
5.3	Etude des mécanismes de l'endommagement laser à l'aide de défauts modèles: Cas d'inclusions métalliques . . . . .	94
5.3.1	Description des "échantillons modèles" . . . . .	95
5.3.2	Description du code d'interaction laser-matière DELPOR . . . . .	98
5.3.3	Mise en évidence d'étapes préliminaires à l'endommagement laser: le "pré-endommagement" . . . . .	107
5.3.4	Etude quantitative de l'étape de "pré-endommagement" . . . . .	113
5.3.5	Etude de la modification du matériau hôte lors de l'endommagement - Effets collectifs . . . . .	123
5.4	Conclusion . . . . .	130
<b>6</b>	<b>Vers le conditionnement laser des matériaux optiques</b>	<b>133</b>
6.1	Introduction . . . . .	134
6.2	Fatigue des matériaux optiques sous tirs lasers répétés . . . . .	134
6.2.1	État de l'Art . . . . .	134
6.2.2	Etude de l'évolution de la tenue au flux laser de la silice sous tirs répétés . . . . .	137
6.2.3	Evolution de la tenue au flux laser du KDP sous tirs répétés . . . . .	145
6.2.4	Bilan . . . . .	147
6.3	État de l'Art sur l'amélioration de la tenue au flux laser . . . . .	149
6.3.1	Mécanismes impliqués dans les phénomènes de conditionnement laser . . . . .	149
6.3.2	Augmentation de la tenue au flux laser de différents matériaux soumis à des tirs multiples . . . . .	151
6.3.3	Techniques alternatives pour l'amélioration de la tenue au flux laser des composants optiques . . . . .	154
6.4	Etude expérimentale du conditionnement laser de la silice . . . . .	156
6.4.1	Procédure de conditionnement par laser Nd:YAG à 355 nm . . . . .	156

6.4.2	Effet du conditionnement sur la tenue au flux laser du com- posant . . . . .	159
6.4.3	Bilan sur le conditionnement de la silice à 355 nm . . . . .	161
6.5	Etude expérimentale du conditionnement laser du KDP . . . . .	161
6.5.1	Introduction . . . . .	161
6.5.2	Estimation de l'amélioration de la tenue au flux laser: gain de conditionnement . . . . .	162
6.5.3	Conditionnement par laser Nd:YAG à 355 nm . . . . .	163
6.5.4	Conditionnement par laser Excimère à 351 nm . . . . .	166
6.5.5	Bilan sur les techniques de conditionnement du KDP . . . . .	172
6.6	Conclusion . . . . .	173
<b>Conclusion</b>		<b>175</b>
<b>Annexes</b>		<b>179</b>
<b>A Propriétés physiques et optiques des matériaux étudiés</b>		<b>179</b>
A.1	Silice Suprasil / Silice Herasil (Heraeus) . . . . .	179
A.2	KTP et LBO (Cristal Laser) . . . . .	181
A.2.1	KTP . . . . .	181
A.2.2	LBO . . . . .	181
A.3	KDP et DKDP . . . . .	182
<b>Bibliographie</b>		<b>185</b>

# Remerciements

Cette thèse a été effectuée au sein de l'équipe "Milieux Aléatoires et Photonique de Puissance" de l'Institut Fresnel entre Septembre 2002 et Juillet 2005 grâce à un financement de la Délégation Générale pour l'Armement.

Je tiens tout d'abord à exprimer mes plus sincères remerciements à Claude AMRA, directeur de recherche au CNRS, pour m'avoir accueilli dans son laboratoire.

J'exprime également toute ma gratitude à Mireille COMMANDRE et Jean-Yves NATOLI, mes directeurs de thèses, sans qui ce travail n'aurait sûrement jamais abouti. Je les remercie en particulier pour l'enthousiasme et la motivation qu'ils ont su m'apporter durant ces trois années. J'espère enfin que ce travail constituera la meilleure preuve de la confiance qu'ils m'ont accordée.

Mes remerciements s'adressent également à Madame Marie FORET, Professeur à l'Université de Montpellier II (Laboratoire des Verres) et à Monsieur Fabrice VALLEE, Directeur de recherche au Centre de Physique Moléculaire Optique et Hertzienne (CPMOH - Bordeaux) pour avoir accepté d'être les rapporteurs de cette thèse.

Je tiens également à remercier Messieurs Jacques LAFAIT, Directeur du Laboratoire d'Optique des Solides (LOS - Paris), Hervé PIOMBINI, Ingénieur de Recherche au CEA/Le Ripault, Marc SENTIS, Directeur de recherche au Laboratoire Lasers Plasmas et Procédés Photoniques (LP3 - Marseille) et M.J. SOILLEAU, Directeur de recherche à l'université de CREOL (Floride) pour avoir accepté de participer à ce jury de thèse.

Ce travail n'aurait pu aboutir sans les nombreuses collaborations avec les différents centres du CEA/DAM. J'aimerais tout particulièrement remercier Monsieur Hervé BERCEGOL pour l'animation scientifique du Groupe de Travail sur l'Endommagement Laser (GT-EL) et Monsieur Jean-Luc RULLIER pour son dynamisme et son rôle moteur pour nos études sur les mécanismes initiateurs de l'endommagement laser. Je tiens également à mettre en avant le travail réalisé

par Patrick COMBIS et Florian BONNEAU à Bruyères-Le-Châtel afin de simuler au mieux mes travaux de "destruction". Que Messieurs Hervé PIOMBINI, David DAMIANI et Matthieu POMMIES trouvent également ici l'expression de mes remerciements pour l'ensemble de nos travaux et échanges scientifiques.

J'apprécie également les contacts avec le milieu industriel, notamment Cristal-Laser (Nancy) et SESO (Aix en Provence) qui m'ont fait bénéficier de leurs expériences respectives dans la fabrication de cristaux non linéaires et dans le polissage des optiques.

Je voudrais aussi exprimer toute ma reconnaissance aux différents stagiaires qui ont participé directement à ce projet. Les uns venaient des quatre coins du monde pour découvrir Marseille (Gabriel d'Italie, Dimitris de Crète et Benjamin des USA) alors que d'autres voulaient en partir pour découvrir le monde (Baptiste).

J'exprime finalement toute ma sympathie à l'ensemble des membres de l'Institut Fresnel, notamment à Jean-Pierre SPINELLI pour les nombreuses pièces mécaniques réalisées ainsi qu'aux thésards avec qui j'ai partagé ces trois années de joie. Tout d'abord Hélène KROL et Jérémie CAPOULADE à qui je souhaite bonne chance pour la suite de leur thèse. Mais également Laëtitia ABEL-TIBERINI avec qui j'ai partagé le bureau pendant trois ans et qui m'a si gentiment supporté.



# Introduction

Les lasers de puissance sont actuellement en plein essor dans de nombreux secteurs industriels et de recherche. C'est le cas en particulier de la mécanique (usinage et soudage de différents matériaux), de la microélectronique (gravure, photolithographie), de la chirurgie (découpe et réparation des tissus humains) ou encore de la biologie (spectroscopie moléculaire résolue en temps). L'endommagement des composants optiques soumis à de forts flux constitue un véritable verrou technologique qui freine le développement de lasers toujours plus puissants. Ce problème apparaît également dès que l'on cherche à confiner la lumière dans de petites structures (fibres optiques, composants pour l'optique intégrée et la micro-optique). Ainsi les pertes optiques liées à l'endommagement des matériaux déterminent largement la "durée de vie" de ces systèmes. Il faut noter que ces problèmes existent pratiquement depuis la première réalisation expérimentale d'un laser en 1960. Le congrès "Laser-Induced Damage in Optical Components" qui a lieu chaque année depuis 1968 à Boulder (Colorado - USA) illustre parfaitement l'importance accordée à cette thématique. Le développement des applications liées aux lasers de puissance ainsi que la mise en oeuvre de grands projets internationaux de fusion par confinement inertiel par faisceaux laser (National Ignition Facility aux USA et Laser Megajoule en France) ont stimulé la communauté scientifique dans le but d'apporter des solutions aux problèmes de tenue au flux laser des composants optiques.

La conception, la réalisation et la caractérisation des composants optiques multi-couches sont des domaines d'expertise de l'Institut Fresnel depuis de nombreuses années. Dans ce contexte, l'étude de l'endommagement laser des composants optiques s'imposait parmi les thèmes de recherche développés au laboratoire. Depuis 1995, quatre thèses [1–4] ont permis de développer des outils théoriques et expérimentaux indispensables à la caractérisation et la compréhension des phénomènes d'endommagement laser pouvant se produire dans les matériaux optiques. Le travail présenté ici s'inscrit dans la suite de cette démarche. Nous étudions de façon rigoureuse les phénomènes physiques responsables de l'endom-

magement laser (origine et nature des défauts présents dans les matériaux, mécanismes initiateurs) dans le but d'améliorer la tenue flux des composants optiques utilisés pour guider et mettre en forme la lumière dans les lasers de puissance. Nous nous intéressons ici uniquement aux matériaux diélectriques à grande largeur de bande interdite. Notons enfin que la majorité des travaux présentés ici sont le fruit d'une collaboration avec le CEA/DAM au sein d'un Groupe de Travail sur l'Endommagement Laser. De ce fait, beaucoup d'études sont directement liées aux problèmes rencontrés actuellement au niveau des composants optiques qui constituent la Ligne d'Intégration Laser, prototype à l'échelle 1 du futur Laser Megajoule.

Nous présentons tout d'abord au chapitre 1, les principaux lasers de puissance ainsi que leurs applications. Une brève description du laser Megajoule est également réalisée afin de mieux cerner les enjeux de l'étude présentée ici.

Le chapitre 2 est consacré aux méthodologies expérimentales et statistiques utilisées pour caractériser le phénomène d'endommagement laser dans les matériaux optiques. A travers une étude bibliographique succincte nous montrons l'importance de mettre en oeuvre une métrologie à la fois fiable et maîtrisée. Puis nous finissons sur quelques exemples de caractérisation de tenue au flux laser réalisés sur des matériaux optiques courants.

Dans la suite du manuscrit (chapitre 3) nous nous intéressons à l'origine de ces endommagements. En particulier, nous développons puis validons l'hypothèse selon laquelle l'endommagement du matériau s'initie au niveau de sites fragilisés (centres initiateurs de taille nanométrique). Un état de l'art nous permet ensuite de faire un point sur les connaissances actuelles liées à la nature physico-chimique et à l'origine de ces défauts intrinsèques au matériau. Finalement, nous étudions comme exemple l'influence du polissage des optiques sur l'apparition des endommagements de surface lors d'une irradiation laser intense.

La compréhension des mécanismes de l'endommagement laser nécessite donc une détection non-destructive des défauts initiateurs (chapitre 4). Nous montrons tout d'abord qu'aucune technique ne permet pour l'instant de détecter l'ensemble de ces défauts et surtout de les corréler aux endommagements créés lors de l'irradiation. Pour les défauts absorbants, nous développons une détection basée sur la microscopie photothermique haute résolution et contrôlons ses performances sur des inclusions métalliques de taille connue.

Le couplage de ce dispositif à un laser d'irradiation nous permet d'étudier précisément les mécanismes qui initient l'endommagement du matériau à partir des centres précurseurs (chapitre 5). Afin de comprendre le rôle de ces défauts dans le mécanisme global, nous décrivons un travail basé sur la modélisation et l'étude expérimentale du comportement de défauts modèles (principalement des inclusions d'or).

Finalement le chapitre 6 est consacré à l'amélioration de la tenue au flux laser des composants optiques. Dans un premier temps, nous décrivons les phénomènes

de fatigue induits dans les matériaux optiques lorsque ces derniers sont sollicités en tirs répétés. A partir de ces résultats, nous définissons et testons des procédures de pré-irradiations laser sous seuil d'endommagement capables d'améliorer la tenue au flux UV de la silice et des cristaux de KDP.



# Chapitre 1

## Lasers de Puissance et endommagement laser

Quelles que soient les applications des lasers de puissance, les phénomènes physiques mis en jeu reposent toujours sur l'interaction du rayonnement électromagnétique du laser incident avec la matière. Néanmoins, selon la nature des matériaux concernés (métal, semi-conducteur ou isolant, matériau amorphe ou cristallin, matériau massif ou en couche mince) et selon le rayonnement laser incident (longueur d'onde, durée de l'impulsion, polarisation, taux de répétition) la réponse de la matière peut être très différente. Nous pouvons par exemple citer des mécanismes aussi variés que le claquage diélectrique du matériau, l'apparition d'effets thermiques (fusion, vaporisation, ...) ou de contraintes mécaniques (ondes de choc, ...).

Après une brève description des lasers de puissance existants, nous effectuons un tour d'horizon non-exhaustif de l'interaction laser matière. Nous montrons à partir d'exemples pourquoi l'utilisation des lasers de puissance est en plein essor actuellement. Puis, dans une seconde partie, nous tentons de comprendre quelles sont les limitations actuelles de ces lasers et pourquoi il est nécessaire d'étudier précisément les phénomènes d'endommagement dans les matériaux optiques afin de développer des lasers toujours plus puissants.

## 1.1 Les lasers de Puissance

Ce paragraphe a pour but de dresser un bref état des lieux des lasers actuels suffisamment puissants pour induire des transformations dans les matériaux. Certains sont devenus des outils incontournables dans l'industrie (Lasers CO<sub>2</sub>, Lasers Nd:YAG, Lasers Excimère) alors que d'autres ne sont encore qu'au stade de développement dans les laboratoires de recherche (lasers à impulsions ultra-brèves, lasers aux très courtes longueurs d'onde). Néanmoins, il est important de connaître avec précision les caractéristiques (longueur d'onde, durée d'impulsion, fréquence de répétition, ...) de chacun d'entre eux afin de comprendre et de maîtriser leurs modes d'interaction avec le matériau à traiter.

### 1.1.1 La puissance laser: régime continu ou régime pulsé?

La puissance d'un laser est définie par la quantité d'énergie qu'il peut fournir par unité de temps (cf. figure 1.1).

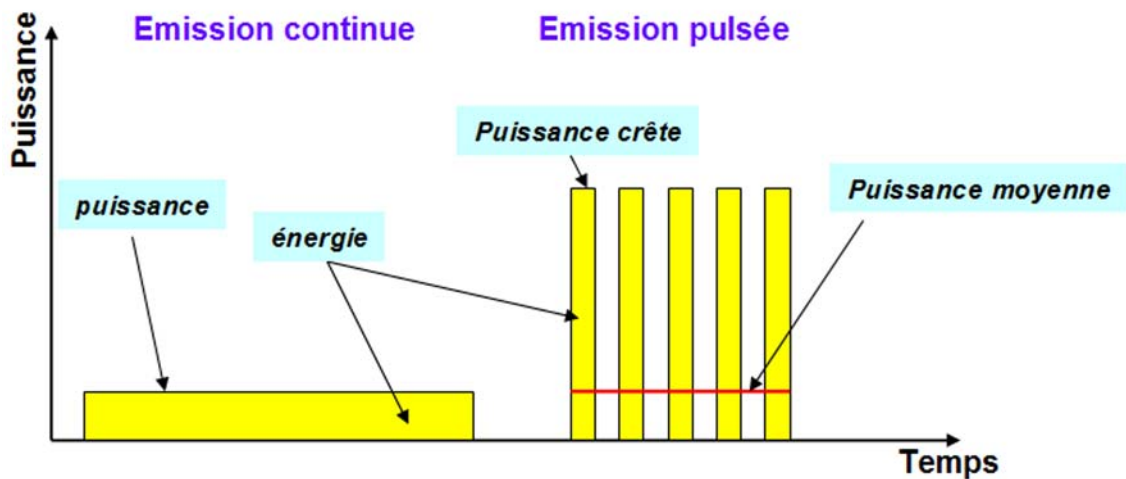


FIG. 1.1 – Représentation schématique de la puissance d'un laser en mode continu et en mode pulsé

C'est la structure même du laser (cavité, milieu amplificateur, ...) qui fixe l'énergie maximale du faisceau de sortie. Dans le cas d'un régime continu, la puissance est limitée et ne dépasse que très rarement quelques dizaines de kilowatts. Il est possible de contourner ce problème en concentrant cette même énergie dans une impulsion lumineuse plus ou moins brève. Dans ces conditions (régime pulsé) la puissance crête atteinte lors de l'impulsion peut être extrêmement élevée (des dizaines de térawatts [5] et certainement jusqu'au pétawatt pour certaines futures installations du CEA/CESTA ou du Laboratoire d'Optique Appliquée).

### 1.1.2 Les lasers continus

#### – Laser à CO<sub>2</sub>:

Le laser à CO<sub>2</sub> [6] émet dans l'infrarouge (IR) lointain aux longueurs d'ondes 10.6  $\mu\text{m}$  et 9.6  $\mu\text{m}$ . Il peut fournir un faisceau laser d'une puissance de quelques watts jusqu'à quelques dizaines de kW. Actuellement, c'est un des lasers les plus utilisés dans l'industrie. Comme la plupart des lasers à gaz, le laser à CO<sub>2</sub> est excité par décharge électrique. Notons ici que ce type de laser peut aussi fonctionner en mode impulsionnel (nanoseconde  $\rightarrow$  milliseconde) [7]: les impulsions sont créées soit par hachage du faisceau soit par décharge (mode *superpulsé*) en délivrant la puissance disponible (quelques kW) avec une fréquence de l'ordre du kilohertz.

#### – Diode laser de puissance:

Ces diodes lasers [8] émettent dans un domaine de longueur d'onde compris entre 780 et 830 nm. Leur assemblage sous forme de batterie ou d'empilement ainsi que leur multiplexage par lentilles ou fibres optiques permettent aujourd'hui d'atteindre des densités de puissance de quelques dizaines de kW/cm<sup>2</sup>. L'intérêt de cet outil réside dans son encombrement très réduit et sa durée de vie importante.

### 1.1.3 Les lasers impulsionnels

#### – Laser Nd:YAG:

La longueur d'onde fondamentale d'émission des lasers Nd:YAG est 1.064  $\mu\text{m}$  (proche IR). L'ion Néodyme Nd<sup>3+</sup> est utilisé comme dopant implanté dans un cristal dont le plus utilisé est le grenat d'yttrium et d'aluminium (Y<sub>3</sub>Al<sub>5</sub>O<sub>12</sub>). Les barreaux de Nd:YAG commerciaux sont obtenus par des méthodes caractérisées par leurs très faibles vitesses de croissance (0.5 mm/h pour une méthode de type Czochralski) et par conséquent leur dimension moyenne excède rarement 15 cm [7]. Dans ces conditions, la taille du milieu amplificateur ne permet pas de produire des impulsions supérieures à 10 J (fréquence de répétition de 0.1 Hz). Actuellement l'utilisation de nouvelles géométries de type "plaques" permet d'atteindre des performances beaucoup plus élevées (jusqu'à 500 mJ à 100 Hz) avec une qualité de faisceau nettement meilleure.

Les lasers Nd:YAG fonctionnent essentiellement en mode impulsionnel (relaxé ou déclenché). En régime déclenché (Q-switched) ces lasers délivrent des impulsions de puissance crête très élevée (de l'ordre du gigawatt) dont la durée peut varier de quelques ns à plus de 700 ns. Dans le cas du régime re-

laxé, les impulsions créées peuvent atteindre des énergies de quelques joules pour des durées d'impulsions comprises entre 0.1 et 20 ms.

– **Laser Excimère:**

Les lasers à excimère sont des lasers à gaz qui émettent uniquement en mode impulsif dans l'ultraviolet entre 157 nm et 351 nm selon le mélange gazeux utilisé. Le milieu gazeux est composé d'un gaz rare (Ar, Xe, Kr) et d'un composé halogéné ( $F_2$ , HCl). L'excitation électrique ou par faisceau d'électrons va conduire à la formation de molécules excitées [ $F_2$  ( $\lambda=157$  nm), ArF ( $\lambda=193$  nm), KrF ( $\lambda=248$  nm), XeCl ( $\lambda=308$  nm), XeF ( $\lambda=351$  nm)]. Les énergies délivrées sont de l'ordre du joule et les durées d'impulsions varient de 10 à 150 ns. Les fréquences de répétition, quand à elles, peuvent atteindre quelques kHz.

– **Laser Titane:Saphir à impulsions ultra-brèves:**

Dans une impulsion laser ultra-brève (picoseconde  $\rightarrow$  femtoseconde), on concentre l'énergie disponible dans un temps très court et la puissance instantanée y est donc d'autant plus grande. Il est possible aujourd'hui d'atteindre des durées d'impulsion de l'ordre de la dizaine de femtosecondes. Une caractéristique importante de ces lasers est la période entre deux impulsions successives. Typiquement il est possible d'obtenir une cadence de 1000 impulsions par seconde.

L'interaction laser-matière en mode femtoseconde a des propriétés directement intéressantes pour les applications industrielles: Contrairement aux lasers précédents, l'interaction est ici athermique. C'est à dire qu'il n'y a pas d'effets thermiques associés à l'interaction et donc pas d'altération des zones voisines de la zone traitée.

## 1.2 Interaction laser-matière

L'interaction laser-matière dépend de nombreux paramètres liés non seulement au matériau irradié mais également au laser. Nous pouvons citer entre autres la longueur d'onde, l'intensité du faisceau laser incident ou encore la durée de l'irradiation. Ainsi pour une même longueur d'onde, on peut passer en fonction de l'intensité et de la durée de l'impulsion d'une interaction de nature thermique (faible valeur de l'intensité laser) à une interaction mécanique (forte valeur de l'intensité). De plus en fonction de la longueur d'onde, l'interaction sera essentiellement thermique (laser émettant dans l'infrarouge) ou photoélec-



tronique (laser UV). Le but du paragraphe suivant est de dresser un bref résumé de ces différents phénomènes [7,9].

### 1.2.1 Interaction thermique

Dans le cas des lasers émettant dans l'infrarouge (laser à CO<sub>2</sub> et Nd:YAG) et utilisés dans des gammes de puissance modérées ( $< 10^4$  W/cm<sup>2</sup>), les effets induits par l'interaction sont essentiellement thermiques (excitation de vibrations de réseau ou de liaisons chimiques). L'irradiation peut ainsi conduire à une fusion ou une vaporisation rapide du matériau. Les vapeurs ainsi créées sont alors susceptibles d'être ionisées créant ainsi un plasma dont la durée de vie peut atteindre quelques millisecondes. Durant cette période, le plasma peut alors chauffer le matériau et interagir avec le rayonnement incident de telle sorte que l'interaction laser-matière soit modifiée. Outre ces effets thermiques, l'expansion du plasma peut être suivie d'ondes de chocs capables elles aussi, d'interagir avec le matériau (apparition de contraintes mécaniques).

### 1.2.2 Interaction photoélectronique

L'interaction photoélectronique est définie comme une perturbation des liaisons interatomiques due à l'excitation des électrons de valence par absorption d'au moins un photon. Cette absorption peut engendrer une modification du matériau irradié. Dans le cas d'un gaz, ceci peut se traduire par une ionisation totale ou partielle. Pour un solide, l'ionisation de la surface pourra être suivie d'une fragmentation. Ce processus nécessite des photons de forte énergie (domaine UV par exemple). L'avantage d'un processus de nature photoélectronique par rapport à un processus de nature thermique réside dans la possibilité de réaliser une interaction localisée puisque la surface traitée est exactement la surface irradiée.

### 1.2.3 Interaction mécanique

Dans le cas des lasers impulsionsnels utilisés dans des gammes de puissance élevées ( $> 10^8$  W/cm<sup>2</sup>) et de temps d'interaction court ( $< 1\mu s$ ), les effets prédominants induits sont mécaniques. Dans ce type d'interaction, le principal intervenant est le plasma qui se forme par vaporisation d'une partie de la surface du matériau et qui, engendre lors de sa détente des ondes de compression dans le matériau qui se transforment rapidement en ondes de choc. L'absorption optique peut également générer une dilatation du matériau et donc l'apparition de contraintes résiduelles.

## 1.3 Applications courantes des lasers de puissance

La variété des effets induits lors de l'interaction laser-matière offre un champ d'applications très vaste dans de nombreux secteurs d'activité. Nous pouvons citer entre autres la mécanique (usinage, ablation), la microélectronique (gravure) ou encore le secteur médical.

### 1.3.1 Micro-usinage

L'application des lasers de puissance la plus développée actuellement est le micro-usinage des matériaux (voir par exemple les références [10] et [11]). En effet, on estime qu'actuellement 80 % des lasers industriels de puissance en service sont dédiés à cette application [12].

- Pour le **perçage** et la **découpe de métaux**, l'utilisation de lasers impulsifs est fréquente. Les lasers Nd:YAG en régime nanoseconde sont le plus souvent utilisés. Néanmoins, le caractère thermique de l'interaction engendre des dégâts indésirables en périphérie de la zone de travail. Dans ces conditions la zone du matériau affectée thermiquement peut s'étendre sur plusieurs centaines de microns. Pour remédier à ce problème, se développe actuellement l'usinage athermique grâce à l'utilisation des lasers femtosecondes. La figure 1.2 illustre l'effet de la durée d'interaction sur la précision du perçage d'un métal.

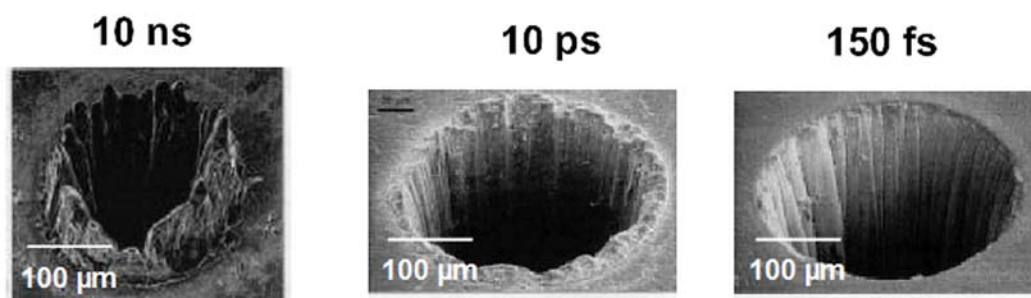


FIG. 1.2 – *Effet de la durée d'interaction sur le perçage d'une plaque en acier*

Cette absence d'effet thermique en régime femtoseconde permet donc de réaliser des motifs dont les dimensions sont sub-microniques (figure 1.3) alors qu'avec un traitement thermique (laser à CO<sub>2</sub> et Nd:YAG en régime nanoseconde), les dimensions minimales sont limitées à quelques micromètres.

- En ce qui concerne le **soudage**, le caractère thermique de l'interaction est nécessaire. De ce fait les lasers femtosecondes ne sont pas adaptés à ce type

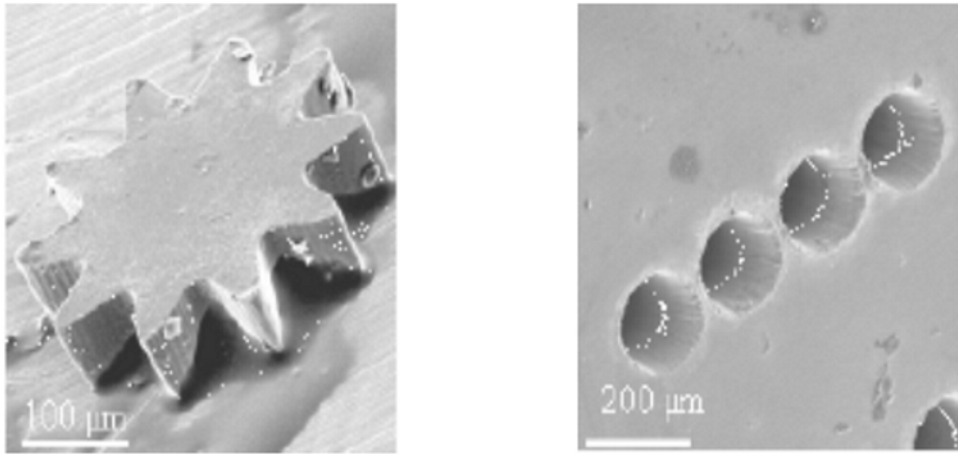


FIG. 1.3 – Exemples de motifs pouvant être usinés à l'aide d'un laser femtoseconde

d'usinage. Les principaux lasers utilisés sont donc les lasers Nd:YAG nano-secondes ainsi que les lasers  $CO_2$  continus.

- Il est également possible d'usiner les matériaux polymères à l'aide d'un faisceau laser. Dans ce cas, l'interaction d'un laser excimère avec une résine photosensible permet par exemple de fabriquer des objets ou des masques en 3 dimensions (stéréolithographie).

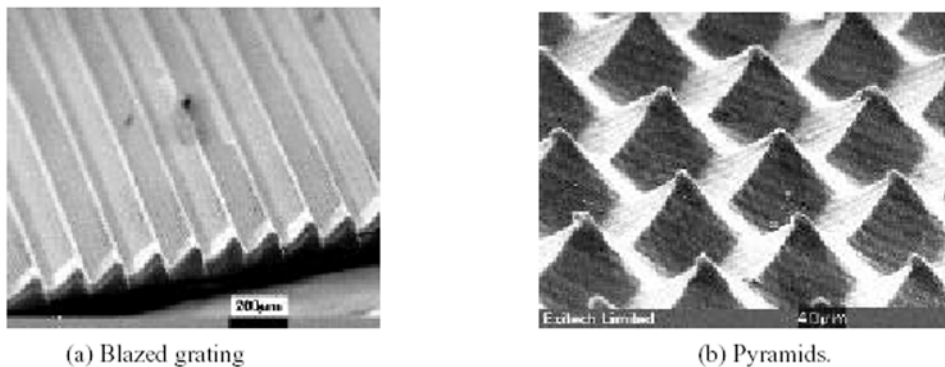


FIG. 1.4 – Gravure 3D par laser excimère (KrF) (images tirées de [10])

### 1.3.2 Ablation laser des matériaux

#### Dépôt de couches minces

Les techniques d'ablation laser peuvent s'apparenter aux techniques décrites dans le paragraphe précédent sur l'usinage des matériaux. Néanmoins, ce procédé a connu un réel essor avec l'apparition du traitement de surface par dépôt de couches minces. Le faisceau laser vient ablater la surface d'une cible. Puis les espèces éjectées viennent se déposer sur un substrat placé en vis-à-vis. La nature et la qualité du dépôt dépendent de nombreux paramètres (intensité du laser, pression partielle du gaz résiduel, température du substrat, adhérence).

#### Nettoyage et décapage des surfaces

Ce traitement vise à l'élimination soit d'une pollution superficielle (élimination des graisses, des poussières ou de salissures diverses), soit d'une couche superficielle chimiquement liée au substrat (peinture, revêtement, oxyde) sans modifications des propriétés du matériau sous-jacent [13, 14]. Cette technique peut par exemple être utilisée pour la décontamination des installations nucléaires [15]. Le nettoyage ou le décapage résulte de la vaporisation de la couche superficielle par absorption du faisceau incident. Les traitements sont généralement effectués dans l'air [16]. Néanmoins, une technique par voie humide est plus particulièrement adaptée à l'élimination de particules submicroniques (microélectronique) [17]. Typiquement, les seuils de densité d'énergie pour le nettoyage sont de 30 à 300 mJ/cm<sup>2</sup> pour un rayonnement ultraviolet et de quelques J/cm<sup>2</sup> lors de l'utilisation d'un laser infrarouge.

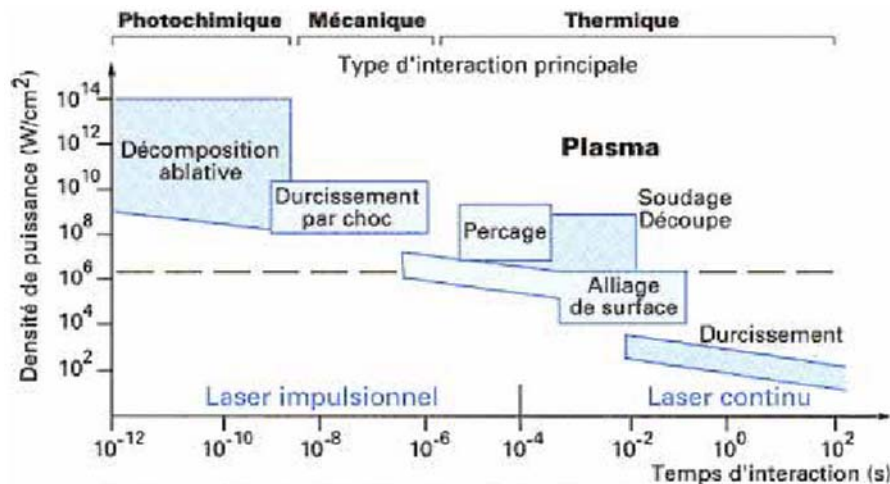


FIG. 1.5 – Effet de l'exposition d'un métal à un faisceau laser de densité de puissance et de durée d'interaction données (image tirée de la référence [9] )

La figure 1.5 résume les différents effets de l'interaction laser-matière sur un métal pour différentes densités de puissance et différentes durées d'interaction.

### 1.3.3 Nanophotonique

Les lasers de puissance peuvent être également utilisés pour modifier de façon irréversible des matériaux optiques photosensibles afin de leur conférer des propriétés particulières. On peut citer par exemple la réalisation de guides d'onde par laser femtoseconde [18] ou la photoinscription de réseaux de Bragg dans des fibres optiques par laser argon doublé [19]. L'inscription se fait par insolation localisée à l'aide d'un faisceau fortement focalisé. On obtient alors dans cette zone insolée une variation d'indice pouvant atteindre  $10^{-3}$ . La géométrie est alors obtenue par déplacement du faisceau laser à la surface de la couche. Dans ce cas, l'objectif ultime visé est l'intégration de diverses fonctions optiques dans le volume d'un matériau transparent de haute qualité.

### 1.3.4 Chirurgie, Dermatologie et Ophtalmologie

L'utilisation médicale des lasers de puissance est principalement basée sur l'interaction thermique qui existe entre le faisceau laser et les cellules à traiter. La fonction même du traitement va dépendre de la température à laquelle sont portés les tissus humains. Pour des températures inférieures à 80 °C, les protéines sont dénaturées et le traitement a une action hémostatique. Lorsque l'intensité lumineuse permet d'atteindre des températures supérieures à 100 °C, il y a vaporisation puis carbonisation des tissus. Le faisceau laser se comporte alors comme un "bistouri laser". Ce type de traitement apparaît actuellement dans divers secteurs médicaux:

- La vaporisation des tissus permet de traiter puis d'éliminer les cellules cancéreuses présentes dans certains organes (lasers Nd:YAG).
- En dermatologie, le laser CO<sub>2</sub> est utilisé pour la chirurgie esthétique de la peau (élimination des tatouages par exemple) [20].
- En ophtalmologie, le laser excimère est recommandé pour la chirurgie réfractive, et pour traiter certaines opacités de la cornée.
- Les lasers de puissance (Nd:YAG essentiellement) sont également utilisés pour les soins dentaires (voir par exemple la référence [21]). Les principales utilisations sont le blanchiment de l'émail des dents et le retrait des caries sans l'utilisation d'outils mécaniques.

## 1.4 Le Laser Mégajoule (LMJ): un laser de puissance particulier

Avec la construction du laser Mégajoule (LMJ), le CEA disposera dans le futur d'un équipement permettant d'exploiter de nouvelles voies de recherche. La puissance colossale fournie par ce laser permettra de reproduire certaines conditions rencontrées à l'intérieur des étoiles telles que le soleil. Il sera alors possible d'obtenir en laboratoire des conditions de température et de pression nécessaires à la combustion thermonucléaire. Ainsi l'étude - et la maîtrise - de la fusion par confinement inertiel permettra en principe de développer des sources d'énergie quasi-inépuisables. Néanmoins, notons ici que cette quête constitue un véritable challenge technologique puisque l'expérience nominale consiste à obtenir une énergie énorme ( $\sim 1.8$  MJ) en quelques nanosecondes sur une cible millimétrique constituée d'un mélange Deuterium-Tritium. Dans le but de répondre à ces spécifications, la solution qui semble actuellement la plus pertinente consiste à focaliser 240 faisceaux lasers UV identiques sur une cible en or de quelques millimètres de diamètre.

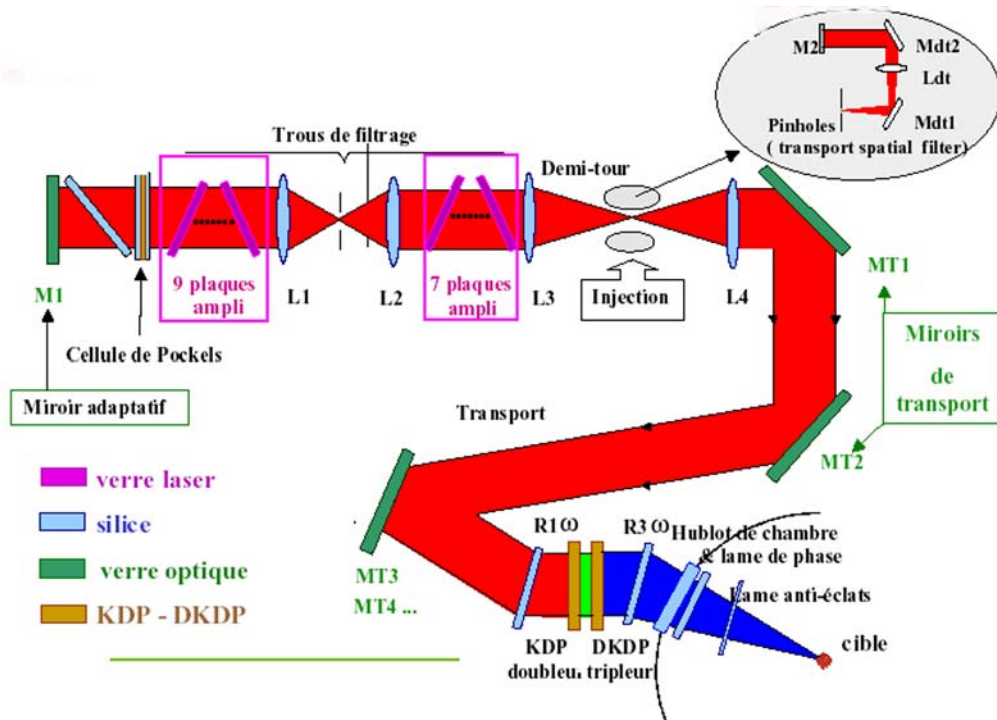


FIG. 1.6 – Architecture d'une ligne laser du Laser Mégajoule

La figure 1.6 représente l'architecture "type" d'une ligne laser. Le "pilote" constitue la source du laser. Un oscillateur monomode pompé par diode permet

d'obtenir l'impulsion laser initiale à 1053 nm de très faible énergie (quelques nano-joules). Une série d'amplificateurs permet ensuite d'augmenter considérablement l'énergie du faisceau laser. En sortie de cette étape, le faisceau laser de section carrée (40 cm x 40 cm) possède une énergie de l'ordre de 15 à 20 kJ. Notons que le choix d'optiques de grandes dimensions (figure 1.7) est nécessaire afin de diminuer au maximum la densité d'énergie du faisceau incident. Actuellement, aucun matériau optique ne permet de réaliser ces performances dans des dimensions plus réduites.

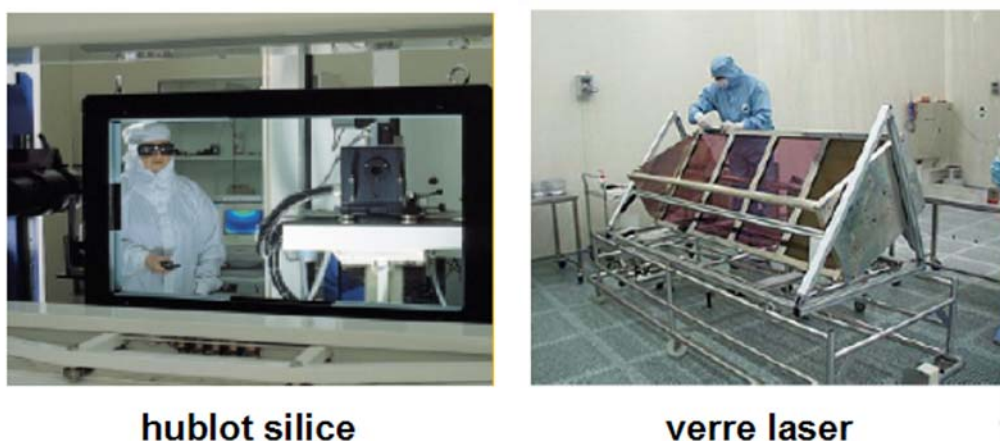


FIG. 1.7 – Exemples d'éléments optiques LIL à l'échelle 1 (images fournies par le CEA/CESTA)

La dernière étape consiste à convertir ce faisceau infrarouge en un rayonnement ultraviolet ( $\lambda = 351$  nm). Pour cela, des cristaux de KDP permettent de doubler puis tripler la fréquence du rayonnement. En sortie, le faisceau est focalisé à travers des hublots de silice dans la chambre d'expérience maintenue sous vide. A titre indicatif, le tableau 1.1 dresse un bilan des composants optiques nécessaires à la mise en service de ces 240 lignes lasers.

<b>Plaques amplificatrices</b>	4 320
<b>Lampes Flash</b>	10 800
<b>Verre (silice)</b>	66 tonnes
<b>Surface à polir (miroirs)</b>	4 000 $m^2$
<b>Traitement anti-reflet</b>	9 000 $m^2$

TAB. 1.1 – Éléments optiques nécessaires au fonctionnement du Laser Mégajoule

Le nombre et la taille de ces différents composants optiques constituent donc ici de véritables challenges technologiques et industriels. La rigueur des spéci-

### 1.5. PROBLÉMATIQUES LIÉES À L'UTILISATION DE CES LASERS DE PUISSANCE: L'ENDOMMAGEMENT LASER DES COMPOSANTS OPTIQUES

fications requises nécessite de réaliser les meilleures optiques possibles afin de diminuer les coûts d'exploitation et d'augmenter le rendement du laser.

A ce jour un prototype à l'échelle 1 fonctionne déjà sur une base de 4 lignes lasers (un quadruplet) au CEA/CESTA. Il s'agit de la Ligne d'Intégration Laser (LIL). Ce prototype permet d'évaluer à la fois les performances d'une telle architecture en terme d'énergie mais également de mettre en évidence les problèmes inhérents à ce nouveau type de laser de puissance.

## 1.5 Problématiques liées à l'utilisation de ces lasers de puissance: l'endommagement laser des composants optiques

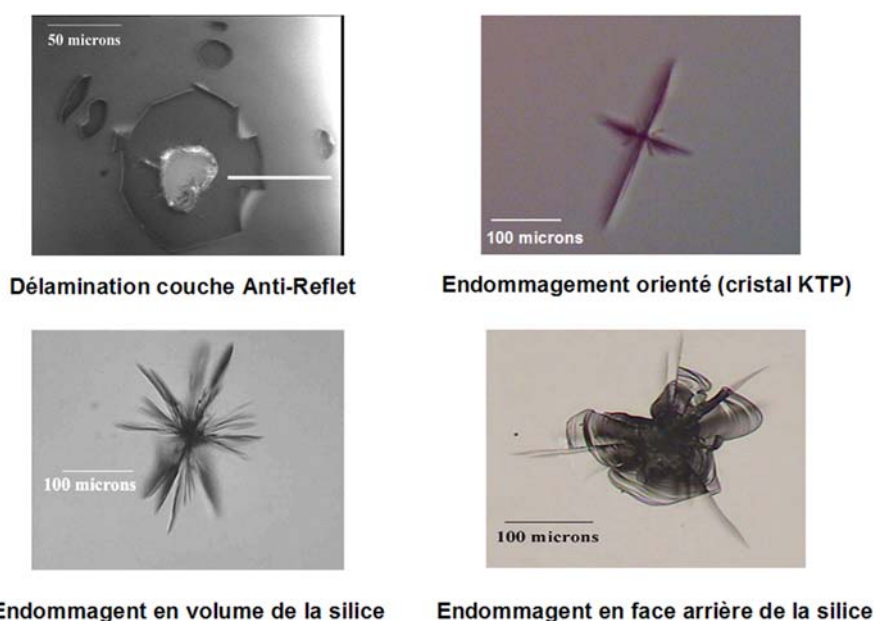


FIG. 1.8 – *Exemples d'endommagements obtenus sur divers composants optiques après irradiation laser*

La limitation actuelle de ces lasers de puissance réside essentiellement dans la tenue au flux des éléments optiques nécessaires au transport et à la mise en forme des faisceaux. Dans le cas de la Ligne d'Intégration Laser (LIL) par exemple, les premiers problèmes ont été identifiés en début de chaîne laser au niveau des miroirs IR. Aujourd'hui les avancées technologiques liées au traitement optique des surfaces ont permis de résoudre ces difficultés mais les problèmes d'endommagement laser se situent en fin de chaîne laser (domaine UV).



Nous pouvons citer entre autres les hublots en silice de la chambre d'expérience ou encore les cristaux doubleur et tripleur de fréquence. Dans le cas des lasers commerciaux, des problèmes équivalents apparaissent également au niveau des miroirs de cavité ainsi qu'au niveau des différents traitements anti-reflet déposés sur les éléments optiques. Lorsque l'irradiation incidente devient trop importante le matériau s'endommage de façon irréversible. La figure 1.8 illustre l'aspect des dommages pouvant apparaître sur différents composants optiques. Comme nous pouvons le voir ici, l'utilisation de composants optiques dans le cadre de lasers intenses peut engendrer une modification irréversible du matériau. On parle alors d'*endommagement laser*. Nous verrons d'ailleurs à ce sujet au chapitre 3 que de simples modifications de l'indice de réfraction ou d'autres propriétés optiques du matériau peuvent également être considérées comme des endommagements. Plus généralement, toute modification (réversible ou irréversible) des propriétés optiques du matériau peut s'avérer nuisible au bon fonctionnement de ces lasers de puissance et doit donc être prise en compte. Dans la pratique, l'endommagement laser des matériaux optiques est une combinaison complexe des différents processus d'interaction laser-matière.

Depuis une trentaine d'années, une intense activité de recherche et développement est donc consacrée à l'amélioration de la tenue au flux laser des composants optiques. Les thématiques ont évolué avec les progrès réalisés et les nouvelles applications. Néanmoins, au fil des années, des thèmes restent récurrents:

- Caractérisation et métrologie de l'endommagement (chapitre 2)
- Détection non-destructive des défauts initiateurs(chapitre 4)
- Mécanismes fondamentaux (chapitres 3 et 5)
- Maîtrise de l'endommagement laser (chapitre 6)

Puisque le mécanisme d'interaction laser-matière dépend fortement du couple "matériau/longueur d'onde", précisons que nous nous intéressons dans ce travail uniquement aux matériaux couramment utilisés (silice, KDP, KTP) avec les lasers Nd:YAG (1064 nm, 532 nm, 355 nm).

*1.5. PROBLÉMATIQUES LIÉES À L'UTILISATION DE CES LASERS  
DE PUISSANCE: L'ENDOMMAGEMENT LASER DES COMPOSANTS  
OPTIQUES*

---

## Chapitre 2

# Caractérisation de la tenue au flux laser des matériaux optiques

Dans ce chapitre, nous décrivons notre méthodologie pour la caractérisation du phénomène d'endommagement laser dans les matériaux optiques. Nous détaillons en particulier les différentes procédures de tests couramment utilisées afin d'obtenir une quantification fiable de la tenue au flux laser. Une étude bibliographique permet ensuite de mettre en évidence l'influence des paramètres de tirs sur le résultat et donc l'interprétation des tests d'endommagement. Afin de permettre la compréhension des mécanismes initiateurs et l'amélioration de la tenue au flux des matériaux optiques, il est donc nécessaire de réaliser des mesures précises et de mettre en oeuvre une métrologie fine de l'endommagement laser. Nous montrons en particulier que l'utilisation de faisceaux laser fortement focalisés permet de séparer le rôle de la surface et du volume. Nous finissons par quelques exemples de caractérisation de tenue au flux laser sur des matériaux optiques classiques (silice, cristaux non linéaires).

## 2.1 Méthodologie mise en oeuvre pour l'étude du phénomène d'endommagement laser

L'étude rigoureuse de la tenue au flux laser d'un matériau optique nécessite avant tout de définir ce qu'est un endommagement laser et surtout comment caractériser au mieux le comportement du composant vis à vis d'une irradiation laser intense.

### 2.1.1 Endommagement fonctionnel et endommagement physique

- **L'endommagement fonctionnel**

Du point de vue de l'utilisateur, l'endommagement laser d'un composant correspond à une modification de ses propriétés optiques (réflexion, transmission) généralement associée à une dégradation du front d'onde. Nous voyons bien grâce à cette définition que le critère d'endommagement fonctionnel est fortement dépendant des performances fixées par l'utilisateur. Un tel critère n'est pas universel et ne permet pas de remonter aux mécanismes physiques à l'origine du claquage. Par conséquent, il ne sera pas retenu dans la suite de notre étude. Néanmoins, ce type de définition a l'avantage de répondre à des spécifications nominales moins sévères mais largement suffisantes pour les applications courantes des lasers de puissance.

- **L'endommagement "physique"**

Dans ce cas, l'endommagement correspond à la plus petite modification physique détectable. Ici, la fonction du composant n'intervient plus, seule la modification du matériau compte. Malgré cela, ce critère reste fortement lié à la méthode de détection et à sa sensibilité. Ainsi des observations réalisées avec un simple microscope optique ou avec un microscope à force atomique ne donneront pas les mêmes résultats. Néanmoins, ce type de définition a pour objectif de tendre vers une mesure absolue de l'endommagement laser. Le but ultime est de détecter les modifications induites sous flux au niveau du centre précurseur lui-même afin d'étudier précisément les mécanismes fondamentaux entrant dans le processus d'initiation. Nous utiliserons donc ce critère pour caractériser l'effet d'irradiations intenses sur les composants optiques.

### 2.1.2 Caractérisation expérimentale de la tenue au flux des matériaux optiques

L'étude expérimentale de la tenue au flux laser des composants optiques se base sur une procédure simple: le matériau est irradié à différentes densités d'énergie (fluence exprimée en  $J/cm^2$ ) puis une analyse fine de la zone permet de conclure à la présence ou non d'endommagement. Cette étude phénoménologique doit permettre de définir de façon fiable des critères caractéristiques du claquage laser du matériau. Deux approches différentes peuvent alors être envisagées:

#### L'approche statistique

La première approche consiste à caractériser la tenue au flux des composants optiques par la probabilité d'endommagement du matériau en fonction de la densité d'énergie appliquée.

Pour effectuer une mesure statistique de la tenue au flux laser d'un matériau optique, plusieurs procédures de test existent. Les deux principales sont définies rigoureusement par des normes ISO [22, 23], permettant ainsi aux utilisateurs de ces composants de faciliter les comparaisons entre des résultats obtenus sur différents bancs de mesure.

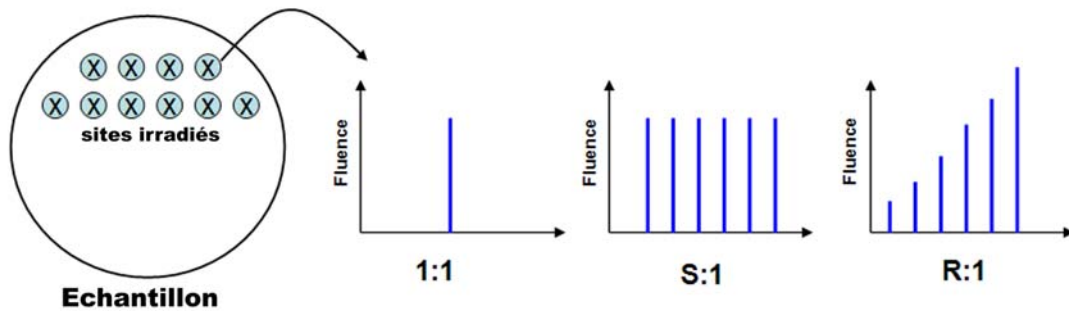


FIG. 2.1 – Procédures de test pour la mesure de tenue au flux laser des composants optiques

#### – Procédure "1on1"

C'est la procédure de test la plus simple à utiliser. Elle correspond à la norme ISO 11254-1 [22]. Chaque site testé n'est irradié qu'une seule fois. Dans ces conditions, la probabilité d'endommagement à une fluence donnée est obtenue en irradiant successivement  $N$  sites indépendants. Cette procédure de test a l'avantage d'être simple à interpréter car aucun effet relatif à la mémoire du matériau n'est sollicité au cours de l'irradiation. Néanmoins,

ce type de mesure nécessite un nombre de sites à irradier important: en pratique, il faut compter au moins 30 sites par énergie pour obtenir une courbe de probabilité d'endommagement correcte. Suivant la taille du faisceau et la dimension de l'échantillon, il ne sera donc pas possible d'obtenir une courbe de probabilité d'endommagement complète.

– **Procédure "Son1"**

Cette seconde procédure de test suit la norme ISO 11254-2 [23]. Elle correspond au cas où chaque site est testé en tirs répétés à la même fluence jusqu'au claquage du matériau. Au même titre que la procédure "1on1", la probabilité d'endommagement pour une fluence donnée est obtenue en testant  $N$  sites indépendants. Cette procédure permet de mettre en évidence le comportement des optiques sous tirs lasers cumulés. Elle prend donc en compte les effets de fragilisation ou de conditionnement des matériaux sous irradiations multiples.

– **Procédure "Ron1"**

La procédure décrite ici consiste à irradier le composant optique en tirs répétés à l'aide d'une rampe d'énergie jusqu'à l'endommagement certain du matériau. Ce test a l'avantage de limiter le nombre de zones irradiées. En effet, chaque site fournit des informations pour l'ensemble des fluences de la gamme de test. Il est donc intéressant d'utiliser cette méthode lorsque le test s'effectue sur de petits composants ou lorsque le temps de mesure devient un paramètre critique. Néanmoins, ce type d'irradiation fait intervenir des paramètres supplémentaires tels que le nombre total d'irradiations, la fréquence de répétition, ou encore l'écart d'énergie entre chaque tir. Les résultats obtenus à l'aide de cette méthode de test sont donc relativement difficiles à interpréter d'autant plus qu'aucune norme ne permet à ce jour de fixer ces différents paramètres.

La figure 2.2 est un exemple de mesure de tenue au flux réalisée en volume d'un verre de silice à 355 nm suivant une procédure 1on1. Notons que l'utilisation ici de faisceaux fortement focalisés ( $8\text{ }\mu\text{m}$  à  $1/e^2$ ) permet de réduire la profondeur de champ et donc la zone irradiée. Dans ces conditions, il est possible de séparer les contributions de la surface et du volume.

Pour une fluence donnée,  $N$  sites indépendants sont irradiés successivement. Pour chaque site, une observation appropriée nous permet de conclure à l'endommagement ou non du matériau: on note alors  $m$ , le nombre de sites ayant été endommagés à cette fluence. Dans ces conditions la probabilité d'endommagement est donnée par  $P(F) = m/N$ . L'ensemble des mesures permet donc de tracer une courbe de probabilité d'endommagement caractérisée par les paramètres sui-

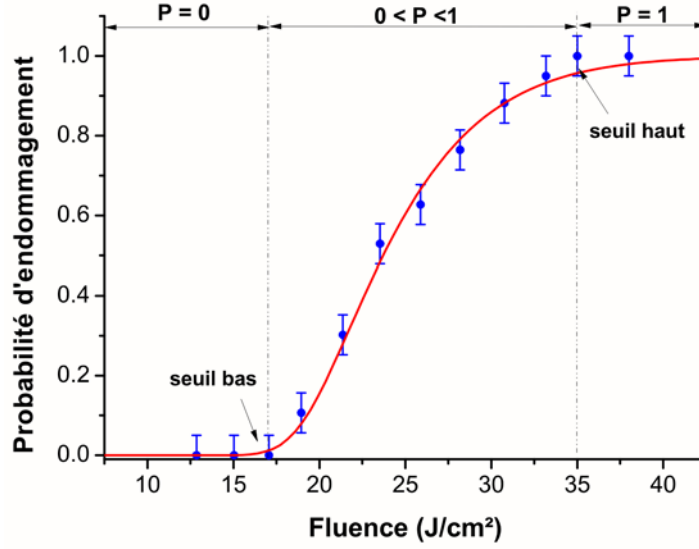


FIG. 2.2 – Probabilité d'endommagement (silice) en fonction de la fluence d'irradiation

vants :

- un **seuil bas** en dessous duquel la probabilité d'endommager le matériau est nulle.
- un **seuil haut** correspondant à la fluence au-dessus de laquelle l'endommagement est certain.
- une **pente** qui, comme nous le verrons plus loin (chapitre 3) est représentative de la densité de centres précurseurs de l'endommagement laser présents dans le matériau testé.

Les mesures de probabilité d'endommagement s'obtiennent à partir d'un nombre limité de tirs lasers. Il est donc important de choisir précisément le nombre  $N$  de sites à tester afin d'obtenir le meilleur compromis possible entre la précision des mesures et la rapidité d'exécution. La loi de probabilité d'endommagement suit une loi binomiale. Par conséquent l'écart-type sur le résultat est donné par la relation suivante:

$$\frac{\sigma_p}{p} = \sqrt{\frac{(1-p)}{pN}} \quad (2.1)$$

L'erreur commise sur la détermination de la probabilité d'endommagement dépend donc du nombre total de sites testés ( $N$ ) mais également du nombre de sites ayant claqué à cette fluence ( $p=m/N$ ). Dans ces conditions, les barres d'erreurs expérimentales devraient être calculées pour chaque densité d'énergie.

## 2.1. MÉTHODOLOGIE MISE EN OEUVRE POUR L'ÉTUDE DU PHÉNOMÈNE D'ENDOMMAGEMENT LASER

---

Afin de simplifier le traitement des données, nous faisons le choix de définir une barre d'erreur unique à partir du cas le plus défavorable. Dans ce cas, la figure 2.3 donne l'évolution de l'écart-type en fonction du nombre de sites irradiés pour une probabilité d'endommagement égale à 0.5.

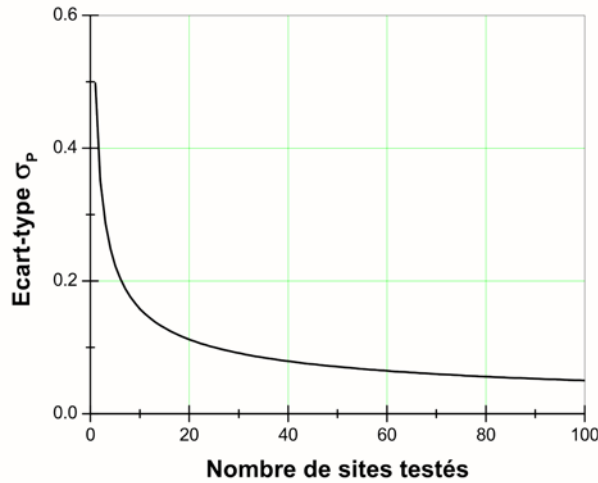


FIG. 2.3 – Evolution de l'écart-type en fonction du nombre de sites testés

Une statistique réalisée à partir de 30 à 50 sites par énergie permet donc de réaliser un bon compromis entre la précision (erreur de l'ordre de 10 %) et la durée d'une campagne de mesures (1 heure pour 1000 points environ). Notons que ce choix semble d'autant plus convenable que la figure 2.3 met en évidence une stabilisation de l'erreur commise lorsque le nombre de sites testés continue à augmenter.

### L'approche globale

Une autre approche de l'étude de l'endommagement laser consiste à caractériser le composant par la densité réelle de dommages créés au cours de l'utilisation.

Néanmoins, dans le cas d'optiques de grandes dimensions, il n'est pas toujours possible de développer une métrologie adaptée à l'utilisation de faisceaux laser de taille similaire. Pour remédier à cela, une procédure dite de "Raster-Scan" a été développée (figure 2.4). Elle consiste à irradier de façon quasi uniforme par recouvrement de faisceaux une grande surface optique à l'aide d'un faisceau laser de petite taille par rapport à celle-ci. Il suffit ensuite de compter les dommages et de les associer à la fluence d'irradiation. Comparée à l'approche statistique, cette méthode a l'avantage de tester la tenue au flux des composants en prenant en compte tous les défauts. C'est le cas en particulier des défauts "extrinsèques" (visibles au microscope optique) qui sont généralement présents dans les matériaux optiques avec de très faibles densités donc difficilement détectables à l'aide



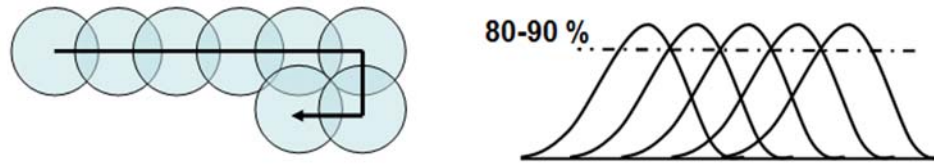


FIG. 2.4 – Schéma de la procédure dite de "Raster-Scan"

d'une approche statistique mais néanmoins fortement pénalisants pour la tenue au flux .

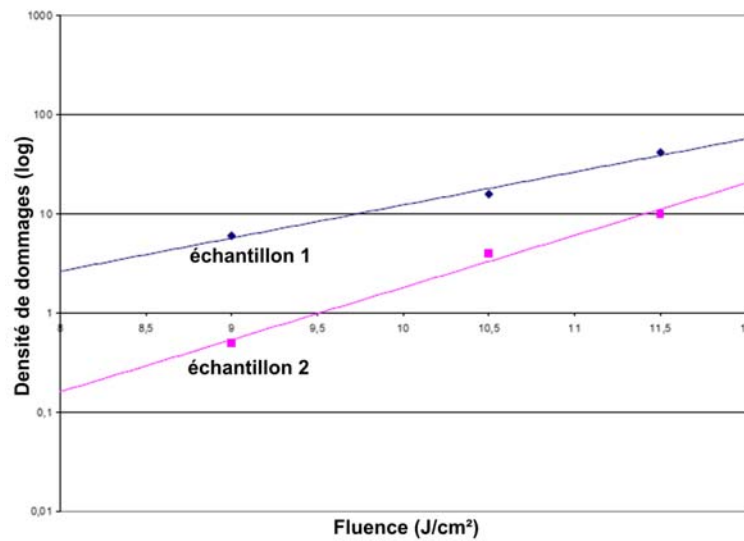


FIG. 2.5 – Densité de dommages (silice) en fonction de la fluence d'irradiation

La figure 2.5 est une illustration typique de la caractérisation de la tenue au flux laser réalisée sur une lame de silice à 355 nm. Pour l'utilisateur, cette représentation a l'avantage d'aboutir à un critère fonctionnel de l'endommagement laser. Notons que dans notre étude, cette approche ne sera pas retenue et seule l'approche statistique sera utilisée pour l'étude des mécanismes de l'endommagement laser dans les matériaux optiques.

## 2.2 Etude bibliographique de l'influence des paramètres de tirs sur la mesure de l'endommagement laser

Avant d'aborder l'étude des phénomènes physiques responsables de l'endommagement laser dans les composants optiques, il est primordial de connaître l'influence de chacun des paramètres de test sur les courbes de probabilité d'endommagement. En particulier, l'existence de lois d'échelle pour la longueur d'onde, la durée d'impulsion et la taille du faisceau laser de test permet de comparer les mesures issues de différents bancs de tests de tenue au flux laser. Nous présentons ci-dessous les résultats de notre étude bibliographique.

### 2.2.1 Longueur d'onde

Merkle et al. [24] ont étudié de façon systématique l'influence de la longueur d'onde d'irradiation (1064 nm, 532 nm et 355 nm) sur le seuil d'endommagement en volume de différents matériaux optiques à base de silice (tableau 2.1).

	1064 nm	532 nm	355 nm
<b>Quartz</b>	130 $GW/cm^2$	100 $GW/cm^2$	45 $GW/cm^2$
<b>Suprasil I</b>	110 $GW/cm^2$	90 $GW/cm^2$	35 $GW/cm^2$
<b>Corning 7940</b>	110 $GW/cm^2$	110 $GW/cm^2$	40 $GW/cm^2$

TAB. 2.1 – *Effet de la longueur d'onde sur le seuil d'endommagement de différents matériaux optiques*

Il apparaît clairement à travers ces résultats que le seuil d'endommagement laser des matériaux optiques est fortement dépendant de la longueur d'onde à laquelle le test de tenue au flux est effectué. Il semble en particulier que le seuil de claquage augmente avec la longueur d'onde. Une étude similaire réalisée par Kuzuu et al. [25] permet de confirmer ces résultats et de définir une loi d'échelle. Ainsi dans la gamme 1064 nm - 355 nm, la dépendance du seuil bas d'endommagement d'un verre de silice en fonction de la longueur d'onde d'irradiation peut être donnée par:

$$I_{th} = 1.45 * \lambda^{0.43} (J/cm^2) \quad (2.2)$$

Notons ici que ce type de loi est donné pour des couples longueur d'onde/matériau très précis. Il est alors difficile d'extrapoler ce comportement à d'autres matériaux.

### 2.2.2 Taille du faisceau d'irradiation

C'est un paramètre important dans le cas des composants optiques de grande taille. En effet, pour le projet Megajoule, par exemple, les optiques sont aux di-

mensions du faisceau laser, c'est à dire environ 40 cm de coté. Dans ces conditions, l'étude de l'endommagement laser directement sur ces optiques s'avère difficile. D'une part à cause du prix important de tels composants et d'autre part à cause des problèmes liés à l'encombrement de la métrologie qu'il faudrait mettre en oeuvre. Il est donc important de définir des lois d'échelle spatiales afin de déduire des mesures obtenues sur des échantillons de taille réduite (diamètre de l'ordre de quelques centimètres), les propriétés de tenue au flux laser sur des composants à l'échelle 1.

Les lois d'échelle spatiales présentées dans la littérature [26–30] se basent globalement toutes sur le fait qu'il est possible d'obtenir à partir des courbes de probabilité d'endommagement, la densité et le seuil de claquage de chaque centre précurseur. Les valeurs ainsi obtenues sont caractéristiques du matériau à la longueur d'onde considérée mais surtout indépendantes de la taille de l'optique testée et de la taille du faisceau d'irradiation. Plusieurs modèles ont été développés. Tous sont basés sur le calcul de la probabilité de présence de ces centres précurseurs sous le spot d'irradiation. Le tableau 2.2 regroupe les principaux modèles proposés ainsi que les hypothèses de travail. La différence entre les modèles se fait essentiellement au niveau de la répartition des défauts en fonction de la fluence à laquelle ils peuvent initier le claquage (seuil d'endommagement).

	Centres précurseurs	Distribution seuil
<b>Arenberg et al.</b> [26]	Indépendants	Loi de Weibull
<b>O'Connel et al.</b> [27]	Indépendants	Loi de Puissance
<b>Bercegol et al.</b> [28]	Effets collectifs	Unicité
<b>Natoli et al.</b> [29]	Indépendants	Unicité
<b>Krol et al.</b> [30]	Indépendants	Loi Gaussienne

TAB. 2.2 – *Hypothèses liées aux différentes lois d'échelle proposées*

Les deux derniers modèles décrits dans ce tableau ont été développés à l'Institut Fresnel dans le but de comprendre l'origine et les caractéristiques sous flux de ces centres précurseurs de l'endommagement laser. Les courbes expérimentales présentées dans la suite du manuscrit étant toutes interprétées à partir de ces hypothèses, un paragraphe du chapitre 3 sera donc entièrement consacré à une description de ces deux modèles. En particulier une discussion sur leur pertinence physique en sera faite.

### 2.2.3 Durée d'impulsion

Une étude paramétrique effectuée par Stuart et al. [31] met en évidence l'effet de la durée d'impulsion laser sur le seuil d'endommagement de la silice et du  $\text{CaF}_2$ .

Pour des durées d'impulsion supérieures à 10 ps, une loi d'échelle en  $\sqrt{\tau}$  peut être appliquée. Cette dépendance temporelle est caractéristique de l'interaction

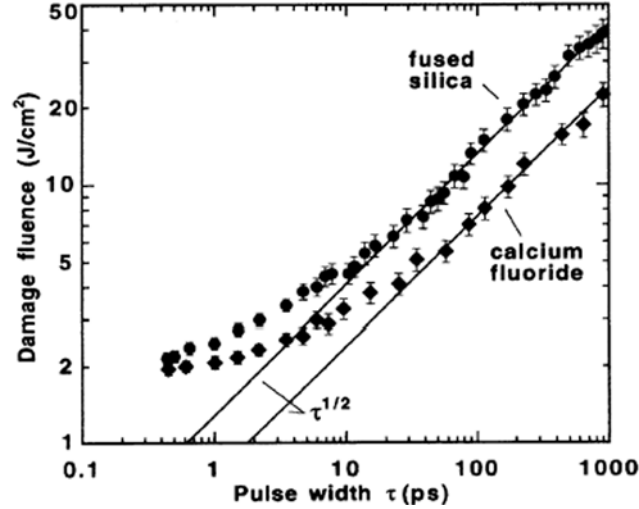


FIG. 2.6 – *Effet de la durée d'impulsion sur le seuil d'endommagement de la silice et du  $CaF_2$  à 1053 nm (figure tirée des travaux de Stuart et al. [31])*

thermique qui existe entre le faisceau laser et le matériau. En dessous d'une dizaine de picosecondes, cette dépendance en  $\sqrt{\tau}$  n'est plus observée (régime athermique). Dans notre cas, les mesures d'endommagement laser sont uniquement réalisées en régime nanoseconde, c'est à dire avec des durées d'impulsion pour lesquelles cette loi d'échelle peut être utilisée.

#### 2.2.4 Fréquence de tir

Lors d'une synthèse sur les phénomènes d'endommagement laser des matériaux optiques transparents [32] Chmel met en avant l'effet "mémoire" des matériaux vis à vis des tirs lasers consécutifs. Selon lui, l'accumulation de tirs aurait pour conséquence une fragilisation du matériau et donc un claquage inéluctable même si la fluence d'irradiation s'avère être très faible en comparaison du seuil bas d'endommagement mesuré en mono-coup. Ainsi toujours selon Chmel, l'augmentation de la fréquence de tir aurait pour conséquence une fragilisation accrue du matériau. Des travaux publiés par Merkle et al. [24] sur l'irradiation de verres de silice à 355 nm et 1064 nm vont également dans ce sens. Notons que l'influence de la fréquence de tir sur l'endommagement laser des matériaux sera étudiée en détail au chapitre 6. Nous effectuons en particulier une étude expérimentale systématique des phénomènes de fatigue dans la silice et le KDP lors d'irradiations laser répétées.

## 2.3 Un banc dédié à la mesure de tenue au flux laser des optiques

Le premier dispositif d'endommagement laser de l'Institut Fresnel a été créé en 1996 au cours de la thèse de P. Volto [1], puis amélioré durant la thèse de L. Gallais [3]. En particulier, des travaux importants sur l'optimisation et l'automatisation du banc de mesure ont permis d'aboutir à une métrologie robuste de l'endommagement laser [33].

### 2.3.1 Présentation du dispositif expérimental

La figure 2.7 représente le dispositif expérimental tel qu'il a été développé pour la caractérisation de la tenue au flux laser des composants optiques. Des adaptations permettant de tester des liquides ou des optiques d'épaisseur importante seront décrites en détail au paragraphe 2.3.3.

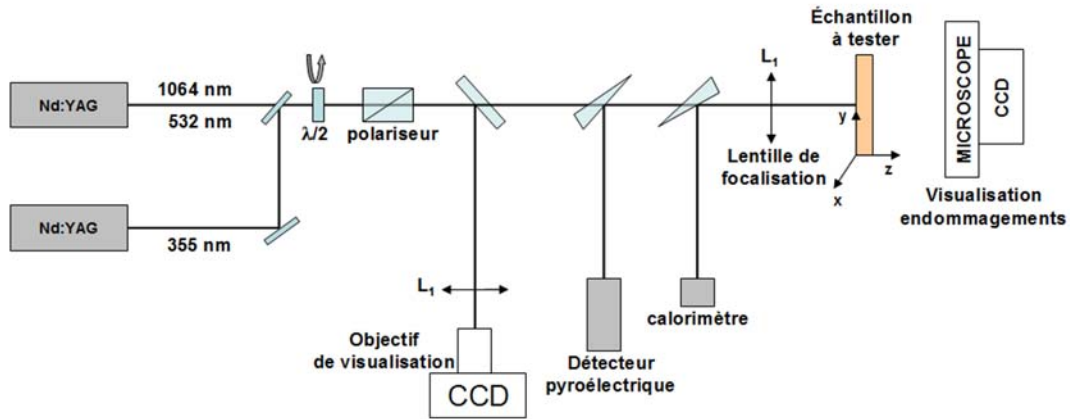


FIG. 2.7 – Banc dédié à l'étude de l'endommagement laser

Deux lasers Nd:YAG impulsionnels polarisés fonctionnant en régime nano-seconde permettent d'avoir accès à différentes longueurs d'onde. Les faisceaux infrarouge ( $\lambda = 1064$  nm) et ultraviolet ( $\lambda = 355$  nm) sont obtenus directement à partir des sources commerciales dont les caractéristiques sont détaillées dans le paragraphe suivant. Un rayonnement visible ( $\lambda = 532$  nm) peut également être obtenu en effectuant un doublage de fréquence du laser infrarouge à l'aide d'un cristal de KTP placé juste après la cavité laser.

L'énergie des différents faisceaux laser est contrôlée automatiquement en amont du dispositif à l'aide d'un système formé d'une lame  $\lambda/2$  et d'un polariseur de type "Glan". Une première partie du faisceau incident est prélevée à l'aide d'une lame séparatrice afin de mesurer en temps réel son profil spatial et temporel.

### 2.3. UN BANC DÉDIÉ À LA MESURE DE TENUE AU FLUX LASER DES OPTIQUES

---

Puis, l'énergie de chaque impulsion laser est mesurée à l'aide d'un détecteur pyroélectrique situé en réflexion d'une première lame prismatique. Cette mesure est doublée à l'aide d'un calorimètre. Finalement, le faisceau laser direct est focalisé sur l'échantillon à l'aide d'objectifs de microscope ou de simples lentilles suivant la taille du spot d'irradiation désirée. Notons ici, que l'un des points forts de ce dispositif est la possibilité de travailler avec des faisceaux fortement focalisés (jusqu'à  $8\text{ }\mu\text{m}$  à  $1/e^2$ ) ce qui rend possible une étude localisée de l'endommagement laser. Ceci permet entre autres d'étudier de façon indépendante l'endommagement laser engendré par les défauts "extrinsèques" (visibles en microscopie optique) et par les défauts "intrinsèques" au matériau (invisibles en microscopie optique du fait de leur taille nanométrique [34]).

De plus, les faibles profondeurs de champ des objectifs utilisés (quelques centaines de microns) permettent de tester séparément la tenue au flux laser de la face avant, du volume et de la face arrière des échantillons. Un microscope à contraste interférentiel équipé d'objectifs à longue distance de travail permet enfin de visualiser sur le composant la zone irradiée et ainsi de détecter la présence ou non d'endommagement une fois le tir laser effectué. La totalité du banc de mesure est automatisée afin de permettre une étude statistique rapide et de limiter les erreurs liées à l'expérimentateur.

#### 2.3.2 Contrôle expérimental des conditions de tir

L'étude statistique de l'endommagement laser des matériaux nécessite, comme l'avons vu au paragraphe 2.2, l'utilisation de sources dont les caractéristiques sont, d'une part parfaitement connues et d'autre part stables dans le temps. En effet des variations brutales et non contrôlées des conditions de tir d'une impulsion laser à l'autre auraient pour conséquence l'apparition d'artefacts de mesure sur les courbes de probabilité d'endommagement ainsi obtenues. Il est donc important de pouvoir décider à tout moment si le phénomène observé est le résultat de variations des conditions de tir ou plutôt de phénomènes physiques réels. De plus, dans le but de comparer les résultats de tenue au flux laser obtenus sur différents bancs grâce aux lois d'échelles décrites précédemment, la connaissance des caractéristiques propres de chacun des lasers utilisés (tableau 2.3) s'avère indispensable.

<b>Longueur d'onde</b>	1064 nm	355 nm
<b>Durée d'impulsion</b>	7 ns	7 ns
<b>Énergie maximale en sortie du laser</b>	40 mJ	10 mJ
<b>Fréquence de répétition</b>	1 - 20 Hz	1 - 20 Hz
<b>Polarisation</b>	linéaire	linéaire

TAB. 2.3 – *Caractéristiques des lasers utilisés pour les tests de tenue au flux laser des composants optiques*

## Profil spatial et temporel du faisceau

### Profil Spatial:

Une caméra CCD équipée d'un zoom adapté permet d'associer à chaque tir une image du faisceau correspondant. Pour imager le faisceau incident, nous utilisons une lentille de focalisation (ou un objectif de microscope) identique à celle utilisée pour l'endommagement. Ceci permet de mesurer avec précision l'ensemble des paramètres du profil spatial. La figure 2.8 est un exemple du type de mesure que l'on peut obtenir au cours d'une campagne de test de tenue au flux.

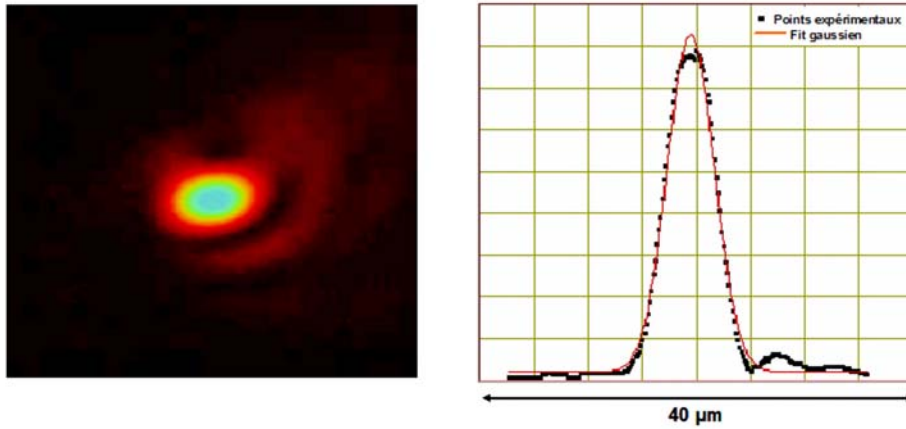


FIG. 2.8 – *Mesure du profil spatial du faisceau laser focalisé*

L'ajustement des points expérimentaux représentant le profil spatial est effectué en temps réel à l'aide d'une enveloppe gaussienne. Le traitement automatisé de ces résultats permet alors d'avoir accès aux dimensions réelles du faisceau (en général la largeur à  $1/e^2$ ) ainsi qu'à la répartition spatiale d'énergie. Comme nous pouvons le voir sur la figure 2.8, le faisceau focalisé n'est pas parfaitement gaussien. Une partie non négligeable de l'énergie contenue dans l'impulsion laser se situe dans les "pieds" de la distribution et par conséquent n'intervient pas dans le processus d'endommagement laser. Or la mesure de fluence se fait à partir d'un détecteur pyroélectrique qui mesure l'énergie globale du faisceau. Dans ces conditions, la prise en compte uniquement de la taille du faisceau à  $1/e^2$  revient à surestimer la tenue au flux laser du matériau. Pour remédier à ce problème de métrologie et conformément aux travaux de L. Gallais [3,33], cet artefact est contourné en définissant une taille de spot effective. De plus, la comparaison du profil spatial du faisceau d'irradiation avec l'endommagement créé permet de définir une fluence localisée en tout point de l'impact sur une zone de  $0.1 \mu\text{m} \times 0.1 \mu\text{m}$  (limitée par la taille du pixel de la caméra et par le grandissement de l'objectif de visualisation).

### Profil temporel:

Comme nous l'avons décrit dans l'étude bibliographique précédente, la connaissance de la durée d'impulsion est primordiale pour la caractérisation de l'endommagement. Ainsi, une estimation précise de la largeur temporelle de l'impulsion permet à partir de la loi d'échelle en  $\sqrt{(\tau)}$  de comparer les résultats obtenus à l'aide de différents lasers. De plus, au même titre que pour le profil spatial, l'enregistrement en temps réel du profil temporel permet d'éliminer des mesures statistiques d'endommagement les tirs au cours desquels le claquage serait dû au dysfonctionnement du laser ("points chauds" temporels).

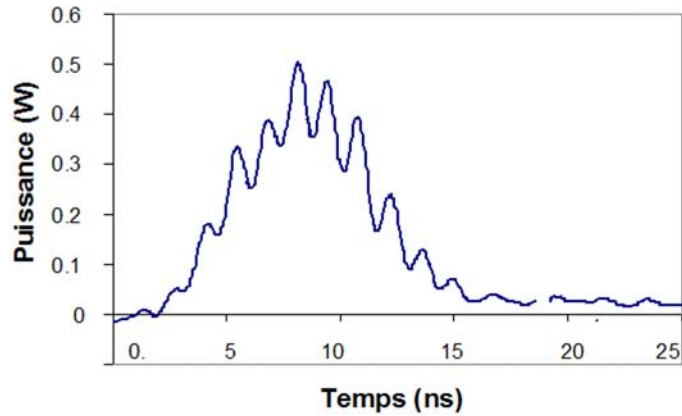


FIG. 2.9 – *Mesure du profil temporel du faisceau laser UV ( $\lambda = 355 \text{ nm}$ )*

La figure 2.9 est une illustration représentative du profil temporel des différents lasers utilisés dans cette étude. Des fluctuations importantes de puissance se superposent au profil gaussien. Ce type de fluctuations provient de la cavité laser qui n'est pas monomode longitudinale. Au vu de ce résultat, il a fallu se demander si ces variations temporelles pouvaient induire des artefacts de mesure ("points chauds" pouvant conduire à un dommage alors que la fluence moyenne reste très inférieure au seuil de claquage). Cette inquiétude a été dissipée en comparant nos courbes de probabilité d'endommagement avec celles obtenues à l'aide d'un laser injecté (monomode longitudinal). Néanmoins, afin de tenir compte au mieux de ces fluctuations, nous définissons au même titre que pour le profil spatial, une durée d'impulsion effective.

Expérimentalement, cette mesure est réalisée sur un profil temporel lissé. Pour cela, nous avons choisi de prendre en compte un profil temporel moyen obtenu à partir de 100 impulsions successives (figure 2.10). Les mesures sont effectuées à l'aide d'une photodiode rapide (temps de montée = 100 ps) et d'un oscilloscope de bande passante 500 MHz.



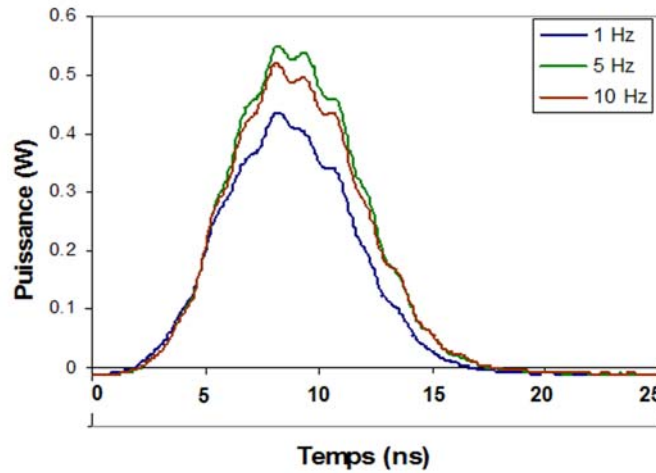


FIG. 2.10 – Profil temporel lissé (moyenne sur 100 tirs successifs) obtenu à différentes fréquences

Le traitement des résultats ainsi obtenus montre que l'impulsion laser a tendance à s'élargir lorsque la fréquence d'utilisation augmente ("jitter" laser). Ainsi dans le cas du laser UV, elle passe de 6.5 ns pour des tirs effectués à 1 Hz à 6.9 ns dans le cas 10 Hz. Cependant, étant donné l'importance des fluctuations temporelles pouvant apparaître au cours d'une impulsion, cet élargissement peut être considéré comme négligeable. Des mesures similaires ont été effectuées sur les impulsions laser obtenues à 1064 nm. Il en ressort que dans les deux cas (355 et 1064 nm) la durée effective de l'impulsion laser est proche de 7 ns.

### Stabilité en énergie

L'étude statistique de l'endommagement laser des matériaux nécessite comme nous l'avons vu précédemment d'effectuer un nombre  $N$  de tirs à la même fluence. Pour que ceci soit possible, les lasers utilisés doivent présenter une grande stabilité en énergie au cours du temps. Pour quantifier cette stabilité, nous avons enregistré à l'aide du détecteur pyroélectrique l'énergie de chaque impulsion sur 1000 tirs pour des cadences de 1, 10 et 20 Hz. Les résultats concernant les deux lasers sont regroupés dans le tableau 2.4.

La stabilité en énergie des deux lasers est acceptable (Écart-type inférieur à 4 %) excepté pour des tirs effectués à 20 Hz. Néanmoins, l'enregistrement de l'énergie pour chaque impulsion permet d'autoriser l'existence de quelques fluctuations au cours de la campagne de mesure. Grâce à l'automatisation de la procédure de test, il est en effet possible de tenir compte de ces fluctuations lors du calcul statistique.

Par ailleurs, nous verrons dans le chapitre 6, que le laser UV décrit ici pour les

### 2.3. UN BANC DÉDIÉ À LA MESURE DE TENUE AU FLUX LASER DES OPTIQUES

---

<b>355 nm</b>	1 Hz	10 Hz	20 Hz
<b>Moyenne (<math>\Delta E/E</math>)</b>	3.1 %	3.4 %	4.5 %
<b>Écart type</b>	2.2 %	2.5 %	3.9 %
<b>Variation max</b>	12.6 %	12.8 %	21.6 %
<b>1064 nm</b>	1 Hz	10 Hz	20 Hz
<b>Moyenne (<math>\Delta E/E</math>)</b>	0.94 %	0.79 %	1.42 %
<b>Écart type</b>	0.73 %	0.69 %	1.33 %
<b>Variation max</b>	4.31 %	6.14 %	12.7 %

TAB. 2.4 – *Stabilité en énergie des lasers IR et UV*

tests de tenue au flux a également été utilisé lors de campagnes de conditionnement laser. Étant donné que ces procédures de pré-irradiations à faibles fluences se prolongent sur des périodes assez longues, nous avons également dû nous assurer que le laser présentait une stabilité équivalente sur des périodes de temps pouvant aller de quelques minutes à quelques heures. Dans le cas d'une utilisation sur une longue durée, la thermalisation de la salle dans laquelle se déroule l'expérience a donc été nécessaire. En effet, nous nous sommes rendus compte qu'un échauffement non maîtrisé de la source laser avait pour conséquence une chute importante et non souhaitée de l'énergie du faisceau incident.

#### Stabilité spatiale du faisceau focalisé

Pour chaque impulsion laser, la fluence (ou densité d'énergie) d'irradiation est donnée grâce à la connaissance de l'énergie et de la taille du faisceau d'irradiation. Nous étudions donc ici la stabilité de la distribution spatiale du faisceau. Pour chaque longueur d'onde, nous avons donc enregistré le diamètre du faisceau focalisé en fonction du nombre de tirs. La figure 2.11 représente l'évolution du diamètre à  $1/e^2$  du faisceau UV (355 nm) focalisé à l'aide d'un objectif de microscope (de marque Newport U-13X). Nous obtenons dans ce cas un diamètre de faisceau égal à  $8.8 \mu\text{m} \pm 0.2 \mu\text{m}$ .

L'utilisation de différents objectifs de microscope ou de simples lentilles permet en outre d'obtenir des faisceaux de diamètre compris entre 8 et 200  $\mu\text{m}$  pour les deux principales longueurs d'onde de travail (1064nm et 355nm).

Il nous arrivera, de plus, au cours de cette étude de montrer des résultats relatifs à l'irradiation de défauts "extrinsèques" comme des billes d'or nanométriques insérées entre deux couches de silice. Pour réussir de telles irradiations, la position du faisceau au cours du temps doit rester stable. Cette condition sera d'autant plus importante lorsque nous étudierons au chapitre 6 l'effet de tirs cumulés sur l'endommagement des composants optiques. Pour cette raison, les lasers utilisés doivent présenter un dépointage entre deux tirs successifs négligeable devant le diamètre du faisceau. La figure 2.12 montre les variations de position du centre du spot laser au cours de 1000 tirs successifs. Ce résultat obtenu dans le cas d'un

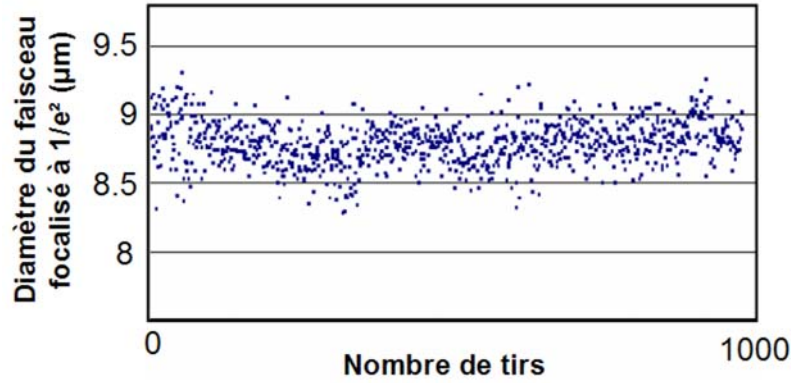


FIG. 2.11 – Enregistrement de la variation du diamètre effectif du faisceau focalisé en fonction du nombre de tirs ( $\lambda = 355 \text{ nm}$ ,  $10 \text{ Hz}$ )

faisceau laser laser UV de diamètre  $20 \text{ µm}$  montre que le dépointage ne dépasse pas  $2 \text{ µm}$ . Notons que cette erreur de positionnement de 10% se retrouve globalement aux deux longueurs d'onde et ceci indépendamment de la taille du spot laser et de sa cadence de tir.

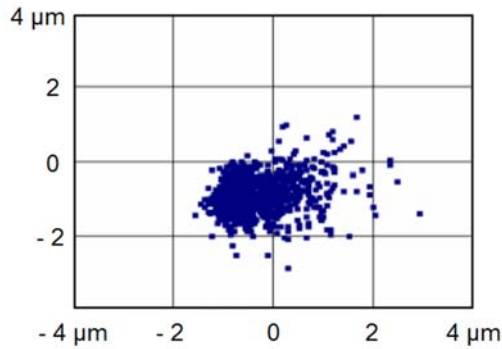


FIG. 2.12 – Enregistrement de la position du faisceau focalisé dans le cas de 1000 tirs successifs ( $\lambda = 355 \text{ nm}$ ,  $10 \text{ Hz}$ )

### 2.3.3 Détection de l'endommagement du matériau

Un point important de la métrologie de la tenue au flux laser réside dans la détection des endommagements créés. De nombreuses techniques sont régulièrement utilisées. Nous pouvons par exemple citer les variations de diffusion d'un laser sonde, la détection d'une onde de choc sonore ou encore la détection de l'endommagement par microscopie optique. En ce qui concerne le dispositif expé-

### 2.3. UN BANC DÉDIÉ À LA MESURE DE TENUE AU FLUX LASER DES OPTIQUES

---

rimental développé à l'Institut Fresnel, différents moyens de détection ont été mis en oeuvre suivant les applications et optimisés en fonction du type de claquage étudié.

#### – Par diffusion in-situ

Un laser sonde (le plus souvent un Helium-Néon) éclaire la zone irradiée. La lumière diffusée par le composant optique est alors collectée par une photodiode (figure 2.13). Afin d'obtenir une détectivité accrue une lentille permet de collecter le signal lumineux sur un plus grand angle solide. Dans ces conditions une variation du signal de diffusion est alors interprétée comme l'apparition d'un endommagement au niveau du matériau.

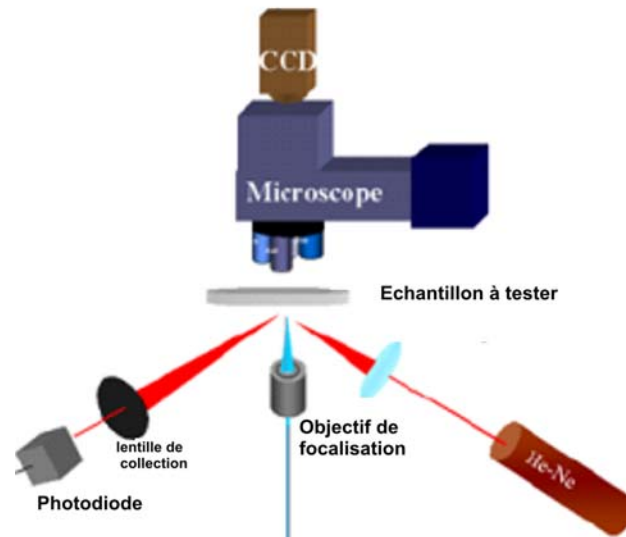


FIG. 2.13 – *Détection des endommagements par diffusion*

La simplicité de mise en oeuvre ainsi que la possibilité de travailler avec des cadences d'irradiation élevées font de cette technique un moyen incontournable de détection de dommages. Néanmoins, dans certains cas, la mesure de variation de diffusion peut engendrer des artéfacts de mesure. En effet, cette technique ne permet pas, par exemple, de faire la différence entre l'apparition d'un endommagement et l'élimination lors du tir laser d'une poussière diffusante en surface d'une optique. Pour remédier à ce problème une détection par microscopie optique a été développée.

– Par microscopie optique in-situ

L'avantage principal de ce banc de mesure réside dans la détection des endommagements de manière in-situ et en temps réel. Pour cela un microscope optique placé derrière l'échantillon permet de suivre l'évolution de la zone étudiée au cours du temps (avant et après tir) et ainsi de conclure ou non à l'endommagement du matériau après irradiation laser. Des objectifs à longue distance de travail permettent d'observer aussi bien la face avant que la face arrière d'échantillons épais (jusqu'à 15 mm). Un grandissement maximal de 1000 couplé à une caméra CCD (0.02 lux) confèrent à ce moyen de détection une très grande sensibilité. Ceci est renforcé par la possibilité d'observation de la zone irradiée suivant trois modes: champ clair, champ sombre et contraste Interférentiel ("Nomarski"). L'utilisation du mode "champ sombre" permet une détection rapide des défauts diffusants. Quant à l'observation en mode Nomarski, elle permet de détecter des variations d'épaisseur optique de l'ordre de quelques nanomètres. Ce dernier mode est d'ailleurs particulièrement intéressant pour détecter les toutes premières étapes du processus d'endommagement lorsque le cratère commence seulement à se former. Cette méthode présente l'énorme avantage de nous renseigner également sur la morphologie de l'endommagement créé sans pour autant avoir recours à des techniques lourdes de type "microscopie à force atomique" ou "profilométrie optique".



FIG. 2.14 – Détection des endommagements par microscopie optique

Dans un but de rapidité et de simplicité d'exécution ce mode de détection a fait l'objet d'une automatisation. La procédure est basée sur la comparaison des images avant et après tir laser (figure 2.14). L'avantage majeur de cette méthode réside dans la possibilité d'éliminer *a posteriori* les artefacts de mesure. L'enregistrement des images de la zone irradiée avant et après tir permet en effet de s'assurer que la modification du matériau est bien réelle.

– **Par détection d’ondes acoustiques**

Dans le cas d’une étude de l’endommagement laser dans les liquides, le claquage des impuretés en suspension est suivi d’une onde de choc acoustique puis d’un plasma lorsque la fluence devient plus importante.

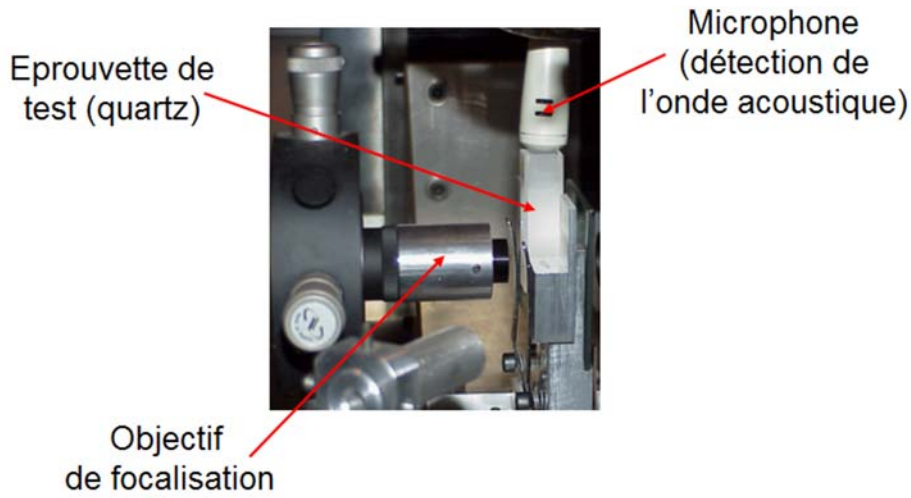


FIG. 2.15 – *Détection des endommagements par ondes acoustiques*

Dans ces conditions, l’utilisation d’un microphone centré sur l’éprouvette de test en quartz contenant le liquide à tester réalise le meilleur critère de détection de l’endommagement (figure 2.15). Des études d’optimisation de ce procédé de détection ont d’ailleurs fait l’objet de divers articles [29,33,35]. Notons que ce moyen de détection présente une réelle utilité. Nous décrivons en effet au chapitre 3, une étude visant à corrélérer les impuretés présentes dans les liquides de polissage aux centres précurseurs responsables de l’endommagement laser en surface des verres de silice.

– **Par microscopie à force atomique ex-situ**

Dans certains cas, la dynamique des moyens classiques de détection (diffusion ou microscopie optique en champ sombre) ne permet pas de voir les plus petits défauts, notamment lorsque ceux ci sont très proches d’endommagements plus étendus. Dans ce cas, seule une étude ex-situ de la zone d’irradiation par microscopie à force atomique (AFM) permet réellement de mettre en évidence tous les dommages. De plus, c’est la seule méthode qui permet de réaliser une étude quantitative de la morphologie des endommagements ainsi créés (largeur, profondeur du cratère,...)

La figure 2.16 illustre l'importance de ce type de mesure ex-situ dans la compréhension des mécanismes de l'endommagement laser des matériaux optiques. En effet, on observe ici un endommagement typique pouvant apparaître lors de l'irradiation d'une monocouche de  $\text{SiO}_2$ . Au niveau de la zone irradiée, la modification du matériau se traduit, comme attendu, par l'apparition d'un cratère de taille comparable à celle du faisceau laser incident. Néanmoins, lorsqu'on s'éloigne du centre du cratère, l'image AFM met également en évidence une modification faible du matériau. Il faut noter que cette variation de quelques nanomètres est difficile à mettre en évidence par diffusion (problème de résolution spatiale) et sera très peu contrastée en microscopie Nomarski. Cela signifie donc que dans ce cas, seule la mesure AFM permet d'avoir réellement une vision d'ensemble du phénomène d'endommagement.

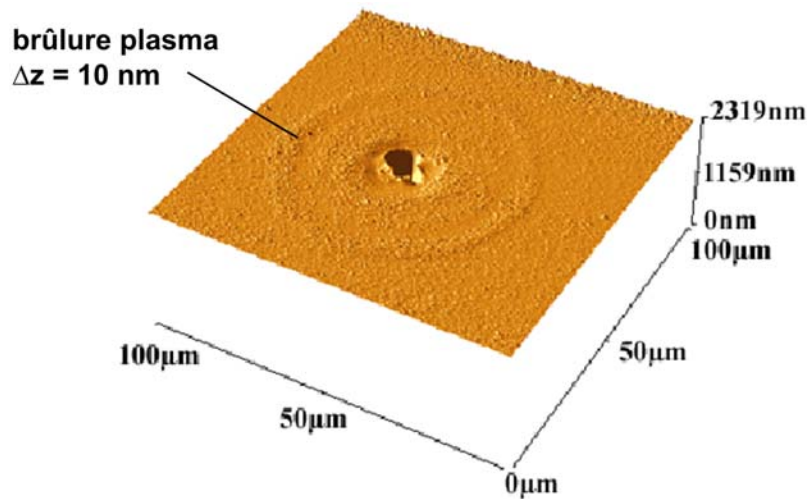


FIG. 2.16 – Image par microscopie à force atomique d'un endommagement en surface d'une monocouche de  $\text{SiO}_2$  déposée sur un substrat de silice

En termes de compréhension des mécanismes physiques mis en jeu, ce type de dommage peut s'interpréter par une "brûlure plasma" du matériau environnant : Lorsque l'énergie d'irradiation est suffisante, un plasma se crée dans l'air au niveau du point d'impact puis se détend en surface. L'élévation locale de température est alors suivie d'une déformation irréversible du matériau sur une distance pouvant atteindre dix fois la taille du faisceau laser incident.

## 2.4 Exemples de caractérisations de tenue au flux laser de matériaux optiques

Ce paragraphe a pour vocation d'illustrer ce que peut être la caractérisation de la tenue au flux laser de composants optiques. Les résultats présentés ici s'articulent autour de deux principaux matériaux : la silice amorphe synthétique (Suprasil) et les cristaux non linéaires de KTP utilisés pour le doublage et le triplage de fréquence des lasers Nd:YAG.

### 2.4.1 Cas d'un matériau amorphe: la silice Suprasil

#### Influence de la zone de test (surface-volume) sur la tenue au flux laser

La figure 2.17 montre la différence de comportement de la silice vis à vis d'un tir laser (diamètre du faisceau =  $8\text{ }\mu\text{m}$  à  $1/e^2$ ) suivant la localisation de l'irradiation (face avant, volume, face arrière).

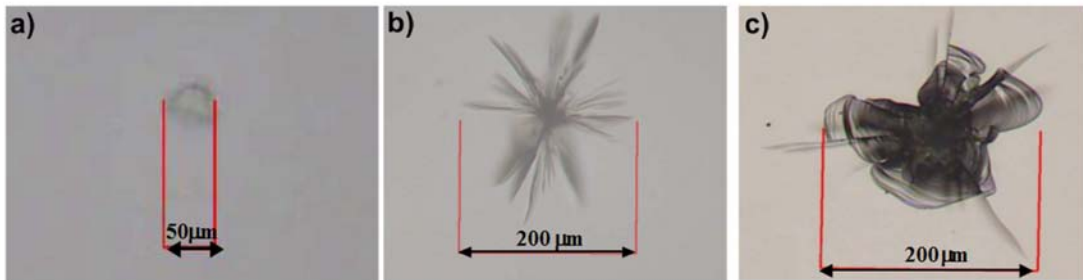


FIG. 2.17 – *Morphologies des endommagements laser observées à l'aide d'un microscope Nomarski a): Face Avant b): Volume c): Face Arrière*

Ces différences de morphologie d'endommagement peuvent facilement s'expliquer par la configuration spatiale du matériau lors de l'initiation du claquage.

Dans le cas d'une irradiation en face avant (a), le plasma initié dans l'air lors du claquage est confiné dans une zone proche du point d'impact. Par conséquent l'endommagement ne peut s'étendre que sur quelques dizaines de microns. En volume (b), l'endommagement s'amorce en un point puis s'étend dans le volume suivant des zones de rupture aléatoires comme attendu pour matériau amorphe. En face arrière (c), l'expansion du plasma créé est facilitée puisqu'aucun matériau ne bloque sa propagation derrière le point d'impact. Cette absence de confinement permet d'éviter les phénomènes d'écrantage et permet donc au dommage d'évoluer plus facilement.



Expérimentalement, la figure 2.18 permet de comparer les probabilités d'endommagement en fonction de la fluence d'irradiation obtenues pour la surface et le volume.

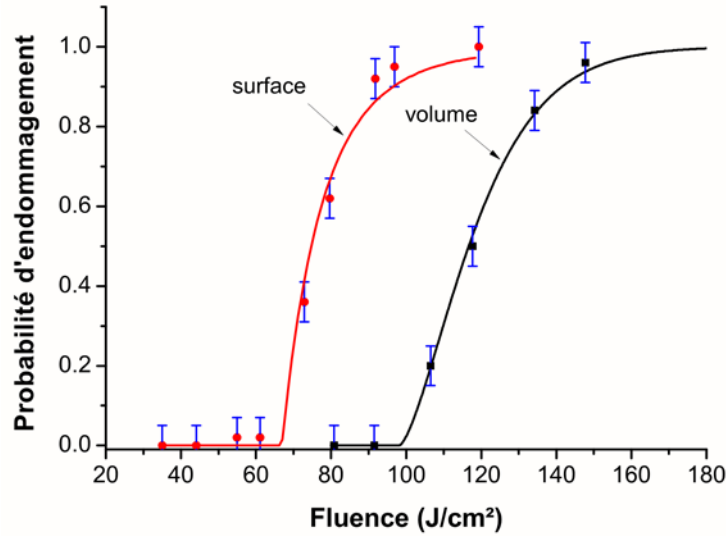


FIG. 2.18 – Comparaison des probabilités d'endommagement obtenues en surface et en volume (silice Suprasil,  $\lambda = 1064$  nm, mode 1on1)

Les différences de comportement mises en évidence ici montrent bien que les processus d'endommagement laser peuvent être très différents pour un même matériau suivant la zone irradiée. Par conséquent la compréhension des mécanismes de l'endommagement laser doit passer par une étude dissociée de ces différentes contributions. Pour cela, l'utilisation de faisceaux laser fortement focalisés est donc une solution appropriée.

### Influence de la longueur d'onde sur la tenue au flux laser

La décroissance du seuil bas d'endommagement avec la longueur d'onde telle qu'elle a été décrite dans l'étude bibliographique précédente a également été mise en évidence expérimentalement sur notre banc de mesure de tenue au flux laser. La figure 2.19 représente ainsi la probabilité d'endommagement mesurée en volume d'une verre de silice Suprasil à deux longueurs d'onde différentes: 355 nm et 1064 nm.

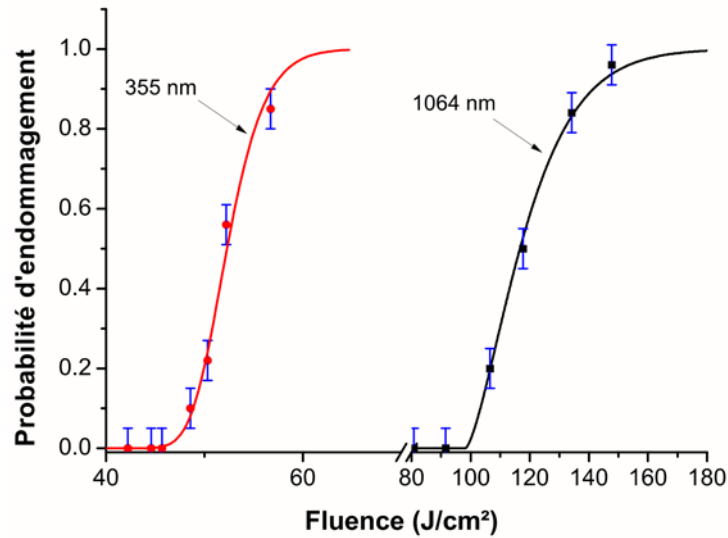


FIG. 2.19 – Probabilité d'endommagement en volume à 355 nm et 1064 nm (mode 1on1)

Cette différence de comportement "chromatique" soulève la question de la nature des centres précurseurs. En d'autres termes, cela revient à se demander si les mêmes centres précurseurs sont à l'origine de l'endommagement laser aux deux longueurs d'onde. Deux hypothèses peuvent alors émerger:

- Soit les défauts sont identiques et leurs propriétés (en particulier l'absorption) dépendent fortement de la longueur d'onde.
- Soit les défauts présents dans la matière ne jouent un rôle que pour certaines longueurs d'onde et dans ce cas, une étude systématique du composant à chaque longueur d'onde d'utilisation s'avère nécessaire à la compréhension globale des mécanismes initiateurs de l'endommagement laser.

### 2.4.2 Cas de cristaux de KTP (origine: Cristal Laser - Nancy)

#### Morphologie des endommagements

Contrairement à la silice amorphe, les morphologies d'endommagement dans un cristal de KTP sont peu sensibles à la zone d'irradiation (face avant, volume ou face arrière). Dans tous les cas, l'endommagement se propage au niveau des plans cristallins (figure 2.20) qui sont naturellement les zones de propagation des fractures dans le matériau. Il est d'ailleurs intéressant de comparer la morphologie

d'endommagement avec l'orientation cristallographique du matériau. Le KTP possède une structure cristalline orthorhombique ce qui signifie que les différents plans font un angle de  $90^\circ$  entre eux. Expérimentalement, on retrouve cet angle de  $90^\circ$  entre les plans de rupture qui apparaissent lors de l'irradiation laser.

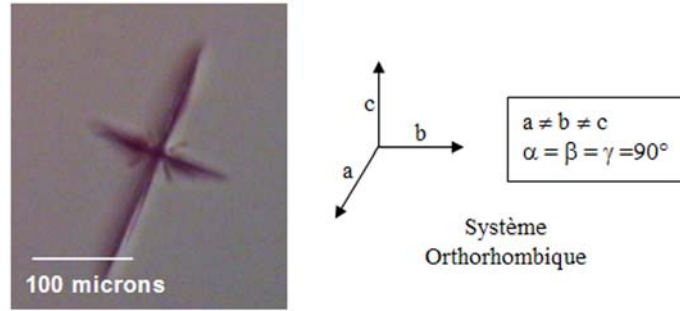


FIG. 2.20 – Morphologie d'endommagement laser en volume d'un cristal de KTP ( $\lambda = 1064 \text{ nm}$ ,  $\phi = 8 \text{ } \mu\text{m}$  à  $1/e^2$ )

Contrairement au cas des matériaux amorphes, la polarisation du faisceau laser va jouer un rôle important dans le processus d'endommagement laser d'un cristal. Expérimentalement cet effet de la polarisation est évidemment mesurable sur les courbes de probabilité d'endommagement. Néanmoins, ce type d'étude n'est pas traité ici. Nous faisons le choix de travailler dans une polarisation donnée (linéaire) et tous les résultats présentés par la suite sont obtenus dans les mêmes conditions.

### Influence de la zone de test (surface-volume)

Au même titre que pour la silice, il est possible de tester de façon indépendante la surface et le volume des cristaux de KTP (figure 2.21). Dans le cas de cristaux de bonne qualité (croissance cristallographique lente), la tenue au flux mesurée en surface est inférieure à celle obtenue en volume. Remarquons tout de même ici que la différence qui existe entre les seuils bas de la surface ( $30 \text{ J/cm}^2$ ) et du volume ( $70 \text{ J/cm}^2$ ) est similaire à celle que nous avons précédemment mise en évidence dans le cas de la silice amorphe.

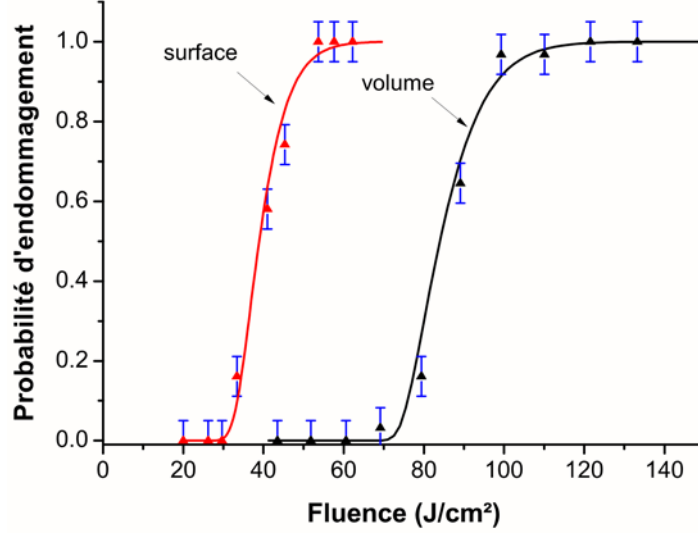


FIG. 2.21 – Comparaison des probabilités d'endommagement obtenues en surface et en volume (KTP,  $\lambda = 1064$  nm, mode 1on1)

## 2.5 Conclusion

Le dispositif expérimental présenté ici permet une étude automatisée de la tenue au flux laser des matériaux optiques. Une détermination précise des endommagements couplée à un contrôle rigoureux des paramètres de tir lui confère donc un rôle central dans l'étude des mécanismes physiques mis en jeu.

Il a ainsi été démontré à travers différents exemples que le banc d'endommagement laser de l'Institut Fresnel permettait :

- (1) d'obtenir des courbes de probabilité d'endommagement représentatives de la tenue au flux laser des matériaux testés. Ceci est rendu possible notamment grâce à un contrôle rigoureux du faisceau laser à chaque tir (durée d'impulsion, densité d'énergie effective,...) et à une détection fine du dommage ainsi créé.
- (2) de détecter avec précision les premières étapes de l'endommagement laser. Ainsi la comparaison des observations par microscopie optique in-situ et par un microscope à force atomique permet de mettre en évidence des corrélations entre la morphologie des dommages et les mécanismes physiques intervenant dans l'interaction laser-matière.
- (3) d'étudier séparément l'endommagement laser en surface ou en volume. Ceci est rendu possible grâce à l'utilisation de faisceaux fortement focalisés

## *CHAPITRE 2. CARACTÉRISATION DE LA TENUE AU FLUX LASER DES MATÉRIAUX OPTIQUES*

---

(diamètre de l'ordre de la dizaine de microns). La visualisation in-situ de la zone irradiée permet également de séparer les défauts "extrinsèques", des défauts "intrinsèques".



## Chapitre 3

# Origine de l'endommagement laser dans les matériaux optiques

Dans ce chapitre, nous exploitons les mesures statistiques de tenue au flux afin de comprendre l'origine du phénomène d'endommagement laser dans les matériaux optiques. Grâce à une modélisation statistique des courbes de probabilité d'endommagement, nous démontrons l'existence de centres précurseurs responsables de l'initiation des dommages. Une étude bibliographique nous permet ensuite de faire un bilan des connaissances actuelles liées à l'origine et à la nature physico-chimique de ces défauts. A titre d'exemple, nous étudions expérimentalement le rôle du polissage sur la tenue au flux laser de la silice. Nous montrons en particulier une corrélation entre les impuretés présentes dans ces liquides de polissage et les défauts initiateurs de l'endommagement en surface.

## 3.1 Validation de l'hypothèse des centres précurseurs de l'endommagement laser

### 3.1.1 Cas du matériau optique parfait

Examinons tout d'abord le cas théorique du matériau optique parfait. En termes d'endommagement laser, cela équivaut à un matériau exempt de tout défaut aussi bien d'un point de vue macroscopique (défauts "extrinsèques") qu'à l'échelle de l'atome (défauts "intrinsèques"). Dans ces conditions, l'endommagement du composant est du au claquage diélectrique du matériau (ionisation d'un atome par le champ électrique incident puis avalanche électronique). Afin de comprendre comment peut alors s'initier l'endommagement laser, Rubenchik et al. [36] ont modélisé ce phénomène physique dans le cas d'une irradiation à 355 nm d'une silice idéale (sans défauts intrinsèques):

Pour produire un endommagement macroscopique, l'énergie minimale que l'on doit apporter par atome au cours de l'irradiation est donc de l'ordre de l'énergie d'ionisation des atomes. En particulier, les auteurs considèrent que le matériau est à son seuil d'endommagement lorsque la densité d'électrons libres atteint la densité critique de plasma ( $10^{21}/\text{cm}^3$ ). Il en découle alors une absorption importante de la lumière laser incidente permettant ainsi de déposer une quantité d'énergie suffisante au claquage du matériau. En utilisant un modèle de Drude pour définir la conductivité de la silice, Rubenchik et al. montrent ainsi que dans le cas d'une irradiation à 355 nm, le seuil de claquage diélectrique du matériau se situe autour de  $150 \text{ GW}/\text{cm}^2$ . Pour une impulsion de 3 ns, cela correspond alors à une fluence de l'ordre de **450 J/cm<sup>2</sup>**.

Expérimentalement, tous les tests de tenue au flux à 355 nm pour le volume des meilleures silices recensées dans la littérature (voir par exemple les références [24, 29, 33]) donnent des valeurs de seuil bas au moins trente fois plus faibles. Ce résultat montre que l'endommagement laser tel qu'il est mis en évidence dans la silice en régime nanoseconde est régi non pas par le claquage diélectrique du matériau intrinsèque mais plutôt par l'évolution thermo-mécanique de défauts présents dans le composant. Dans ces conditions, on parle généralement de **centres précurseurs de l'endommagement laser** .

De plus, dans le cas d'un matériau optique parfait, le claquage diélectrique devrait s'initier de façon aléatoire dans le matériau. Donc en particulier, dès lors que le champ électromagnétique incident a atteint le seuil de claquage, l'apparition d'un endommagement sous le spot d'irradiation devient un événement certain. Ceci devrait se traduire sur la courbe de probabilité d'endommagement par une fonction "échelon" (figure 3.1). Or, les courbes de probabilité d'endommagement expérimentales obtenues à l'aide d'un faisceau fortement focalisé sont toutes ca-



caractérisées par une dispersion des probabilités d'endommagement (figure 3.2).

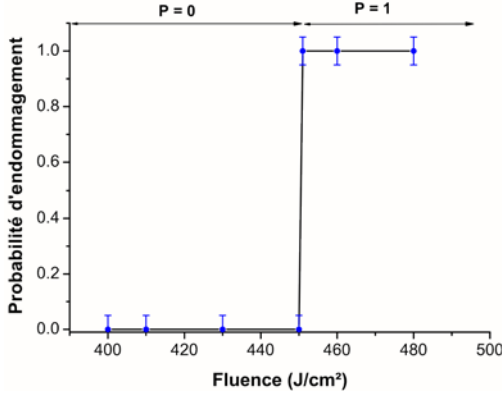


FIG. 3.1 – *Probabilité théorique d'endommagement d'un matériau parfait (silice, volume,  $\lambda = 355$  nm, 1on1)*

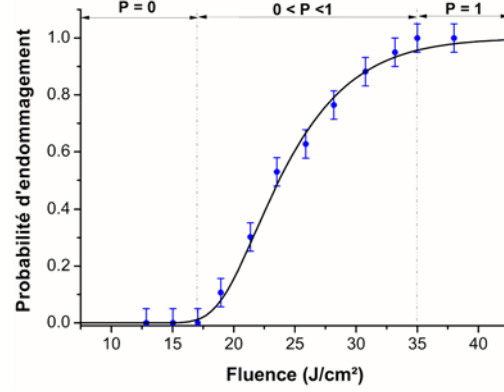


FIG. 3.2 – *Probabilité d'endommagement d'un matériau réel (silice, volume,  $\lambda = 355$  nm, 1on1)*

Dans le cas de faibles densités de défauts, l'utilisation de faisceaux laser focalisés (diamètre de l'ordre de  $10 \mu\text{m}$  à  $1/e^2$ ) peut conduire à irradier des zones dans lesquelles aucun défaut n'est présent. Dans ces conditions, la probabilité d'endommagement est inférieure à 1. Ce phénomène de dispersion est donc une signature de l'existence des centres précurseurs de l'endommagement laser au niveau desquels s'initie le claquage.

L'approche présentée dans la suite du manuscrit se base sur cette hypothèse. A savoir, l'existence dans le matériau de défauts initiateurs de l'endommagement laser dont les caractéristiques sont:

- Une **taille nanométrique** (il est impossible de les détecter par microscopie optique en fond noir ou en mode Nomarski).
- Une **densité faible**. C'est à dire une distance moyenne entre défauts supérieure à la taille du faisceau d'irradiation (tout au moins en faisceaux focalisés). Il est donc possible dans ce cas d'irradier des zones exemptes de tout défaut lors du test statistique.

### 3.1.2 Un modèle statistique au service de la compréhension des phénomènes d'endommagement laser

Afin d'étudier l'origine de ces centres précurseurs de l'endommagement laser ainsi que leur évolution lors de l'irradiation du matériau, nous devons être capables de les caractériser précisément. Les paramètres pertinents pour la tenue au flux laser sont:

### 3.1. VALIDATION DE L'HYPOTHÈSE DES CENTRES PRÉCURSEURS DE L'ENDOMMAGEMENT LASER

- Le seuil d'endommagement des défauts. C'est à dire la fluence au dessus de laquelle on assistera au claquage du matériau (initié par les centres précurseurs).
- Le nombre de défauts par unité de volume ou par unité de surface.

Ces caractéristiques peuvent être facilement déduites des courbes de probabilité d'endommagement à l'aide des modèles évoqués dans le chapitre 2 au sujet des lois d'échelle spatiales. Nous décrivons ici brièvement les deux modèles développés successivement à l'Institut Fresnel (Natoli et al. [29] puis Krol et al. [30]) et utilisés tout au long de ce document pour caractériser les centres précurseurs de l'endommagement laser.

#### Introduction

Ces deux modèles sont basés sur l'interaction de défauts isolés avec un faisceau laser gaussien. Chaque défaut est caractérisé par son propre seuil d'endommagement  $T$ . La densité de défauts, quant à elle, est spécifiée par la fonction  $g(T)$ , qui donne le nombre de défauts par unité de volume pouvant initier l'endommagement pour des fluences comprises entre  $T$  et  $T + dT$ . Dans ces conditions et pour une fluence  $F$  donnée, le nombre de défauts présents sous le spot d'irradiation et pouvant conduire à l'endommagement du matériau est donné par :

$$N(F) = \int_0^F g(T) \cdot V_T(F) \cdot dT \quad (3.1)$$

où  $V_T(F)$  correspond au volume d'irradiation dans lequel la densité d'énergie est supérieure au seuil de claquage  $T$  (figure 3.3) .

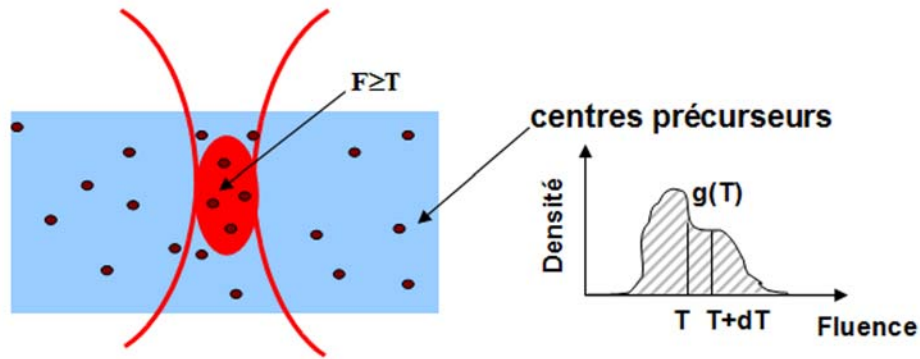


FIG. 3.3 – Schéma des centres précurseurs de l'endommagement laser dans un matériau optique

Dans le cas d'un faisceau gaussien, il a été montré que ce volume d'interaction dépendait de la fluence d'irradiation [3]. L'équation 3.2 donne une expression analytique de cette quantité.

$$V_T(F) = \frac{4\pi(\omega_0)^2 \cdot z_R}{3} \cdot (U^3 + U - \arctan U) \quad (3.2)$$

$$\text{avec } U = \sqrt{\frac{F}{T_0} - 1} \quad (3.3)$$

$\omega_0$  et  $z_R$  représentent classiquement le waist et la distance de Rayleigh du faisceau laser utilisé.

Dans ces conditions, la probabilité d'endommagement du matériau à une fluence donnée (équation 3.4) est calculée à partir de la probabilité de présence d'un défaut sous le spot d'irradiation.

$$P(F) = 1 - \exp(-N(F)) \quad (3.4)$$

Comme nous pouvons le voir à partir de cette équation, la probabilité d'endommagement du matériau à une fluence donnée dépend donc essentiellement de la densité des défauts pouvant initier un endommagement à cette fluence.

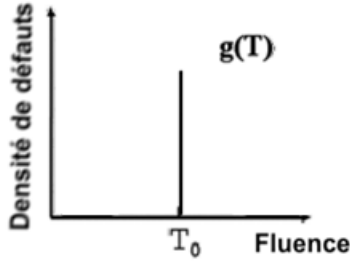


FIG. 3.4 – *Distribution unique de défauts ayant un seuil d'endommagement  $T_0$*

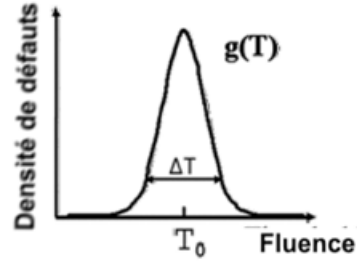


FIG. 3.5 – *Distribution gaussienne de défauts autour du seuil d'endommagement  $T_0$*

### Modèle dégénéré

C'est le modèle le plus simple. Il est basé sur l'hypothèse selon laquelle, tous les défauts d'une même classe initient l'endommagement à une fluence donnée (figure 3.4). Ici la fonction  $g(T)$  est représentée par un dirac centré en  $T = T_0$ .

Dans ces conditions le nombre de défauts  $N(F)$  est simplement donné par:

$$N(F) = d \cdot V_T(F) \quad (3.5)$$

où  $d$  représente la densité de défauts dans le matériau.

### 3.1. VALIDATION DE L'HYPOTHÈSE DES CENTRES PRÉCURSEURS DE L'ENDOMMAGEMENT LASER

---

Ainsi, la loi de probabilité d'endommagement s'exprime de la façon suivante:

$$F < T_0, P = 0 \quad (3.6)$$

$$F > T_0, P(F) = 1 - \exp\left[-\frac{4\pi(\omega_0)^2 z_R}{3}(U^3 + U - \arctan U)\right] \quad (3.7)$$

L'ajustement de ce modèle aux courbes expérimentales de probabilité d'endommagement permet donc d'avoir accès au seuil de claquage de ces défauts ( $T_0$ ) ainsi qu'à leur densité ( $d$ ).

La validation expérimentale de ce modèle a été réalisée à l'aide de liquides calibrés [3, 29]. Notons que le choix de ce type d'échantillons se justifie par la possibilité de modifier à volonté les densités de défauts initiateurs en effectuant des mélanges entre deux échantillons parfaitement connus (eau non-purifiée et eau déionisée).

#### Modèle Gaussien

Ici l'hypothèse d'un seuil unique de claquage n'est plus valide. Nous supposons plutôt que le seuil d'endommagement est distribué suivant une loi gaussienne centrée en  $T = T_0$  (figure 3.5). Dans ces conditions la fonction  $g(T)$  prend la forme suivante:

$$g(T) = \frac{d}{\Delta T \cdot \sqrt{2\pi}} \exp\left[-\frac{1}{2}\left(\frac{T - T_0}{\frac{\Delta T}{2}}\right)^2\right] \quad (3.8)$$

$$\text{avec, } \int_0^\infty g(T) dT = d \quad (3.9)$$

Dans le cas des centres précurseurs présents en volume, les expressions du nombre de défauts et de la probabilité d'endommagement sont données respectivement par les équations 3.10 and 3.11.

$$N(F) = \frac{d}{\sqrt{2\pi} \cdot \Delta T} \int_0^F \exp\left[-\frac{1}{2}\left(\frac{T - T_0}{\frac{\Delta T}{2}}\right)^2\right] \cdot V_T(F) dT \quad (3.10)$$

$$P(F) = 1 - \exp\left[-\frac{d}{\sqrt{2\pi} \cdot \Delta T} \int_0^F \exp\left[-\frac{1}{2}\left(\frac{T - T_0}{\frac{\Delta T}{2}}\right)^2\right] \cdot V_T(F) dT\right] \quad (3.11)$$

L'ajustement de ce modèle aux points expérimentaux permet d'avoir accès à la densité moyenne de défauts présents dans le matériau, mais également dans ce cas, à la distribution du seuil d'endommagement des défauts considérés (valeur moyenne, écart-type).

Ici aussi, il serait intéressant de valider ce modèle théorique à l'aide de liquides calibrés. Pour cela, nous pouvons envisager d'utiliser des liquides contenant des particules (métalliques ou diélectriques) de taille micrométrique et réparties à façon suivant différents profils.

### Pertinence de ces modèles

L'utilisation des ces deux modèles dans le but de caractériser les centres pré-curseurs de l'endommagement laser nécessite que l'on s'attarde sur la pertinence physique des hypothèses utilisées. Deux points doivent être mis en avant:

- Dans le modèle dégénéré, le défaut ne peut être caractérisé que par un seuil unique d'endommagement. Or cette hypothèse est physiquement insuffisante. En effet si on considère un type de défauts donné, par exemple des particules abrasives de CeOx (utilisées lors du polissage), il est illusoire de penser que toutes ont exactement les mêmes caractéristiques. En réalité, la taille exacte de ces particules est distribuée autour d'une valeur moyenne ( $d_0 \pm \Delta d$ ). Par conséquent cette dispersion de taille doit également se retrouver dans les seuils d'endommagement ( $T_0 \pm \Delta T$ ). Le modèle gaussien permet donc de prendre en compte cette distribution réelle. Expérimentalement, il existe des cas d'ajustement théorique pour lesquels le modèle dégénéré ne permet pas de converger vers une solution satisfaisante (figures 3.6 et 3.7).

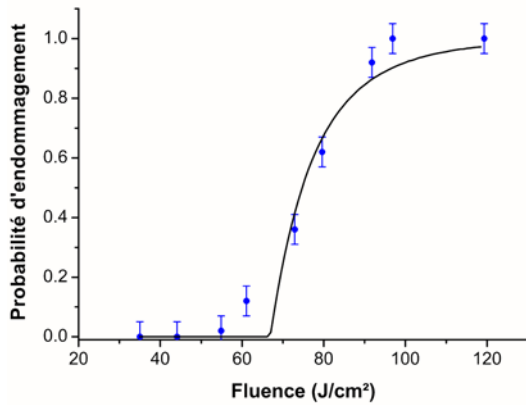


FIG. 3.6 – *Ajustement théorique à l'aide du modèle dégénéré*

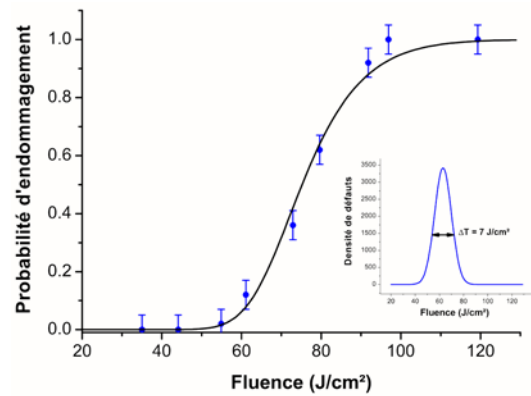


FIG. 3.7 – *Ajustement théorique à l'aide du modèle gaussien*

- A contrario, l'utilisation du modèle gaussien, ne doit en aucun cas cacher d'autres réalités physiques. Ainsi, l'ajustement des points expérimentaux à l'aide de distributions trop larges ( $\Delta T$  supérieur à quelques  $J/cm^2$ ) peut

### 3.1. VALIDATION DE L'HYPOTHÈSE DES CENTRES PRÉCURSEURS DE L'ENDOMMAGEMENT LASER

masquer l'existence de plusieurs défauts différents avec des seuils d'endommagement proches et des distributions étroites. La figure 3.8 est une illustration théorique de ce problème. Il est possible d'obtenir des courbes de probabilité d'endommagement relativement similaires avec des distributions de défauts totalement différentes. Dans ces conditions, il vaudra mieux considérer plusieurs défauts plutôt qu'un seul très dispersé car cette seconde hypothèse s'avère physiquement moins probable.

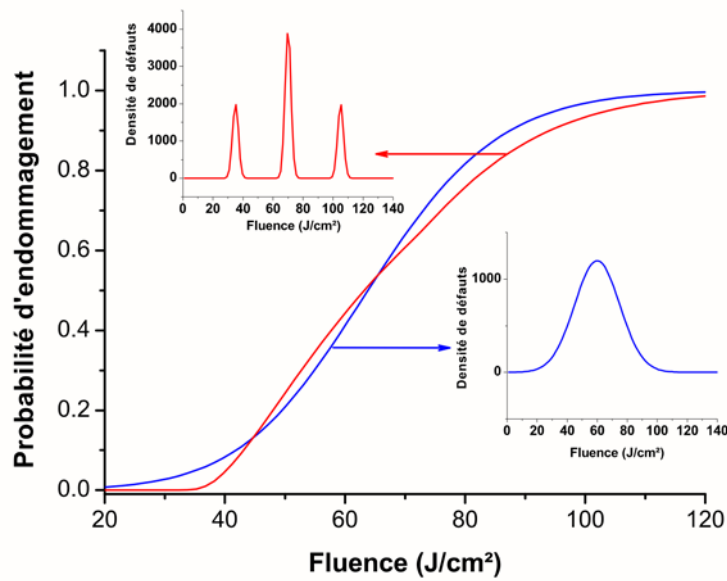


FIG. 3.8 – Influence de la répartition de défauts sur la courbe de probabilité d'endommagement

#### 3.1.3 Mise en évidence expérimentale par méthode globale: Morphologie des endommagements

Les valeurs relativement faibles de seuil de claquage par rapport au matériau parfait ainsi que la dispersion des courbes de probabilité d'endommagement sont donc, comme nous venons de le voir, deux signatures de l'implication de centres précurseurs dans les mécanismes d'endommagement laser des matériaux optiques. Néanmoins, nous verrons au chapitre 4 qu'aucune méthode non destructive ne permet pour l'instant de mettre en évidence tous ces défauts nanométriques et de les corréler à l'endommagement laser. Nous allons par contre décrire ici une expérience destructive permettant de mettre en évidence ces centres précurseurs à partir des morphologies des endommagements qu'ils initient.

L'expérience consiste à irradier une monocouche de silice obtenue par méthode sol-gel à l'aide d'un faisceau laser IR de grande dimension (environ  $600\text{ }\mu\text{m}$  à  $1/e^2$ ). Avant tir laser, des images obtenues en microscopie optique ainsi qu'en microscopie à force atomique permettent de s'assurer que la surface du composant ne présente aucun défaut "extrinsèque" capable d'initier un endommagement lors de l'irradiation.

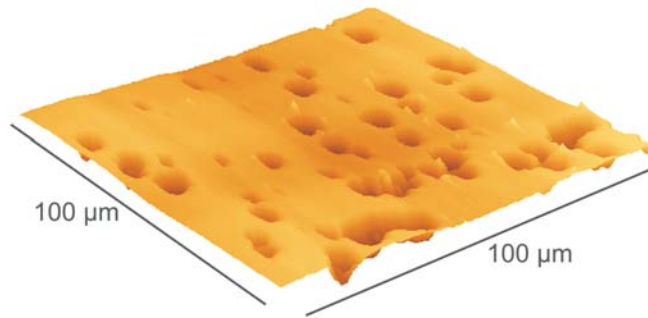


FIG. 3.9 – *Endommagement d'une couche mince de silice après irradiation en large faisceau*

La morphologie de la surface après tir (figure 3.9) permet néanmoins de mettre en évidence des cratères. Nous avons donc ici une preuve directe de l'existence de ces centres initiateurs de l'endommagement laser invisibles en microscopie classique. On parle alors de défauts nanométriques intrinsèques au matériau. En effet le claquage n'apparaît pas de façon aléatoire (ce qui serait le cas pour un claquage diélectrique) mais plutôt de façon localisé au niveau de ces zones fragilisées. Une étude rapide de la morphologie de la surface irradiée montre que ces zones sur lesquelles s'initient ces endommagements ont une densité surfacique de l'ordre de  $5.10^3/mm^2$ .

Parallèlement, nous avons procédé à la mesure statistique de la probabilité d'endommagement de cette même surface à l'aide d'un faisceau de petite taille ( $10\mu\text{m}$  à  $1/e^2$ ) afin de déterminer précisément à l'aide du modèle précédent la densité ainsi que le seuil de claquage des défauts présents dans la couche de silice (figure 3.10). L'ajustement de cette courbe de probabilité d'endommagement donne une répartition de défauts comparable à ce que nous mettons en évidence lors de l'irradiation en faisceau large (densité de défauts  $\sim 6.10^3\text{ déf}/mm^2$ ). Par conséquent, les cratères révélés figure 3.9 peuvent être assimilés à une signature après claquage des défauts initiateurs de l'endommagement laser du matériau.

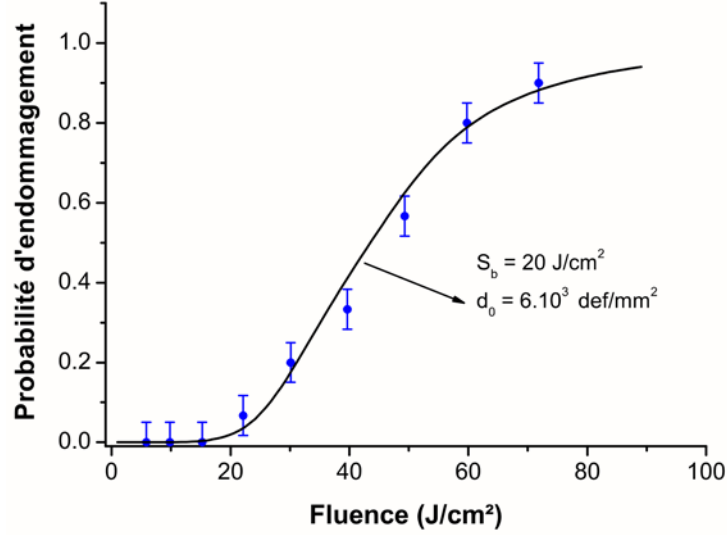


FIG. 3.10 – Probabilité d'endommagement mesurée en faisceau focalisé ( $1064\text{ nm}, \phi = 12\text{ }\mu\text{m}$  à  $1/e^2$ , mode  $1on1$ )

### 3.1.4 Mise en évidence expérimentale par méthode statistique: Effet de la taille du spot d'irradiation

La probabilité de rencontrer un défaut initiateur augmente avec la taille du volume d'irradiation. Cela signifie que pour des fluences supérieures au seuil d'endommagement, la courbe doit tendre vers un échelon avec l'augmentation de la taille du faisceau laser de test. D'un point de vue expérimental, nous avons mis en évidence ce phénomène dans le cas d'endommagements réalisés sur une lame de silice et sur un cristal de KDP à  $355\text{ nm}$ . Les courbes de probabilité d'endommagement sont obtenues suivant une procédure de type 1:1 pour différentes tailles de spot et l'ajustement théorique de ces points expérimentaux est réalisé à l'aide du modèle statistique gaussien développé précédemment.

#### – Cas de la silice

La figure 3.11 montre l'évolution de la probabilité d'endommagement pour trois tailles de spot différentes (respectivement  $22, 45$  et  $95\text{ }\mu\text{m}$  à  $1/e^2$ ). Nous faisons le choix de limiter cette étude paramétrique à un spot d'irradiation de  $95\text{ }\mu\text{m}$  à  $1/e^2$  pour deux raisons précises:

1. L'augmentation de la taille du faisceau d'irradiation est suivie d'une augmentation de sa profondeur de champ. Or dans la configuration utilisée (cf. chapitre 2) ceci risque d'endommager le microscope situé juste derrière l'échantillon et utilisé pour la détection des endommagements.



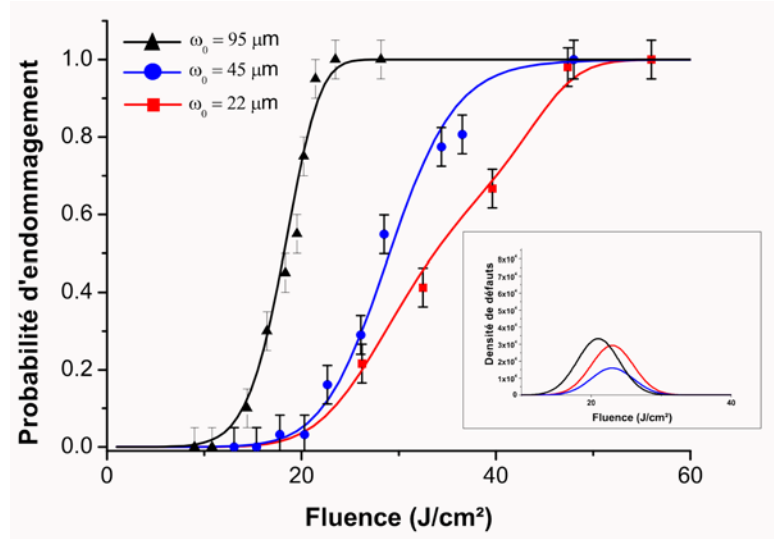


FIG. 3.11 – Effet de la taille du spot d'irradiation sur les courbes de probabilité d'endommagement (Silice, Face Arrière,  $\lambda = 355$  nm, mode 1on1)

2. Afin d'obtenir une fluence donnée, l'augmentation de la taille du faisceau incident est accompagnée d'une augmentation de la puissance crête de l'impulsion. Étant donné que les endommagements se font en face arrière, nous devons donc toujours travailler avec des puissances inférieures à la puissance critique d'autofocalisation dans la silice afin de ne pas biaiser les résultats de mesures d'énergie. Une description plus fine de ce problème est réalisée dans l'étude bibliographique du paragraphe 3.2.3.

Comme attendu, la pente de la courbe augmente avec la taille de spot. Dans le cas "95  $\mu\text{m}$ ", nous avons presque atteint l'échelon pour lequel il y a toujours au moins un défaut sous le spot d'irradiation. De plus, l'ajustement théorique nous permet, pour chaque courbe, de déduire la répartition des défauts à l'origine de l'endommagement. Ici, nous pouvons vérifier que ce sont les mêmes défauts qui sont mis en évidence dans les trois expériences. Les écarts qui apparaissent entre les distributions ne sont pas significatifs d'autant plus que les endommagements se font en face arrière. En effet, une contamination de la surface peut se produire au cours de l'étude et ainsi modifier faiblement les courbes de probabilités d'endommagement d'un test à l'autre. Ce problème peut être contourné en réalisant le même type d'étude en volume du matériau. Dans le cas de la silice ceci est impossible car les surfaces possèdent un seuil de claquage plus bas et s'endommagent donc prioritairement lors d'une irradiation en faisceau étendu. Par contre dans le cas d'un cristal de KDP obtenu par croissance rapide, l'étude est rendue

### 3.1. VALIDATION DE L'HYPOTHÈSE DES CENTRES PRÉCURSEURS DE L'ENDOMMAGEMENT LASER

possible puisque c'est le volume qui s'endommage en premier.

#### – Cas du KDP

Dans le cas du cristal de KDP, l'évolution de la probabilité d'endommagement en volume en fonction de la taille du spot d'irradiation valide également l'hypothèse des centres précurseurs de l'endommagement laser (figure 3.12). D'une part, les défauts mis en évidence sont rigoureusement identiques et d'autre part, la probabilité de trouver un de ces centres précurseurs augmente bien avec la taille de la zone testée.

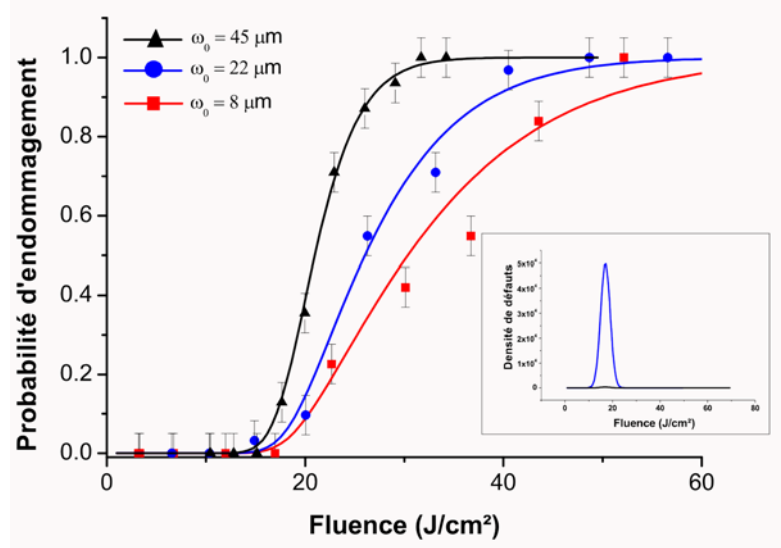


FIG. 3.12 – *Effet de la taille du spot d'irradiation sur les courbes de probabilité d'endommagement (KDP, Volume,  $\lambda = 355$  nm)*

Cette similitude de comportement montre donc que dans les deux cas, le claquage s'initie toujours au niveau de centres précurseurs présents dans le matériau. En terme de tenue au flux, ces deux résultats montrent tout de même des différences entre la silice et le KDP. En particulier, les défauts révélés à la même longueur d'onde ( $\lambda = 355$  nm) présentent des seuils et des distributions de seuil différents selon le matériau. Cela signifie donc que, même si le processus est identique (initiation l'endommagement par des centres précurseurs), les défauts quant à eux, restent de nature différente suivant le matériau.

## 3.2 État de l'art sur l'origine des centres précurseurs de l'endommagement laser sous irradiation unique

La compréhension et la maîtrise des mécanismes de l'endommagement laser dans les matériaux optiques sont fortement liées à la connaissance des défauts précurseurs du claquage. C'est pourquoi, nous dressons ici un état de l'art sur l'origine supposée des centres précurseurs de l'endommagement laser. Nous évoquons, par exemple les défauts liés à la structure du matériau. Ce problème est traité tout d'abord à l'échelle macroscopique (rayures, craquelures, ...) puis à l'échelle de l'atome (centres colorés, ...). Les impuretés et autres contaminants de taille nanométrique pouvant s'insérer dans le matériau au cours de sa fabrication ou durant son utilisation sont également étudiés. Finalement, nous montrons que l'endommagement laser des matériaux optiques sous irradiation unique peut également s'initier à travers des effets non linéaires intrinsèques au matériau.

### 3.2.1 Défauts de structure du matériau

#### Défauts macroscopiques

La présence d'inhomogénéités de structure dans les matériaux optiques peut entraîner des augmentations locales du champ électrique incident. Ces sur-intensifications du champ permettent alors de favoriser les mécanismes d'avalanche électronique et donc le claquage diélectrique du matériau dans cette zone.

Bloembergen est l'un des premiers à avoir quantifié ce phénomène [37]. Ainsi selon ses travaux publiés en 1973, la présence de rayures en surface du matériau, ou de bulles d'air en volume peuvent engendrer une élévation locale de l'intensité du champ électrique d'un facteur de 2 à 1000 suivant la géométrie des défauts considérés. Ces inhomogénéités de structure pourraient apparaître lors de la fabrication des optiques en particulier durant les étapes de découpe et de polissage. Par exemple, des travaux expérimentaux visant à corréler l'existence de rayures micrométriques avec l'endommagement de la silice à 355 nm ont été publiés en 1998 par Salleo et al. [38]. Nous pouvons enfin citer les travaux en cours de réalisation au CEA/CESTA pour étudier l'influence de la forme de rayures microniques réalisées par indentation en face avant de lames de silice sur l'apparition d'endommagements en face arrière [39].

#### Défauts structuraux absorbants induits sous flux

D'un point de vue microscopique, l'existence de zones dont la structure atomique et électronique est modifiée peut également avoir une influence sur la tenue au flux laser des composants optiques. En particulier, Skuja et al. [40] effectuent

### 3.2. ÉTAT DE L'ART SUR L'ORIGINE DES CENTRES PRÉCURSEURS DE L'ENDOMMAGEMENT LASER SOUS IRRADIATION UNIQUE

une revue de tous les défauts structuraux (centres colorés) pouvant exister dans la silice et associent à chacun d'entre eux, le domaine spectral dans lequel ils présentent un fort pic d'absorption. La figure 3.13 représente ces différentes bandes d'absorption et les relie aux longueurs d'onde des lasers de puissance usuels.

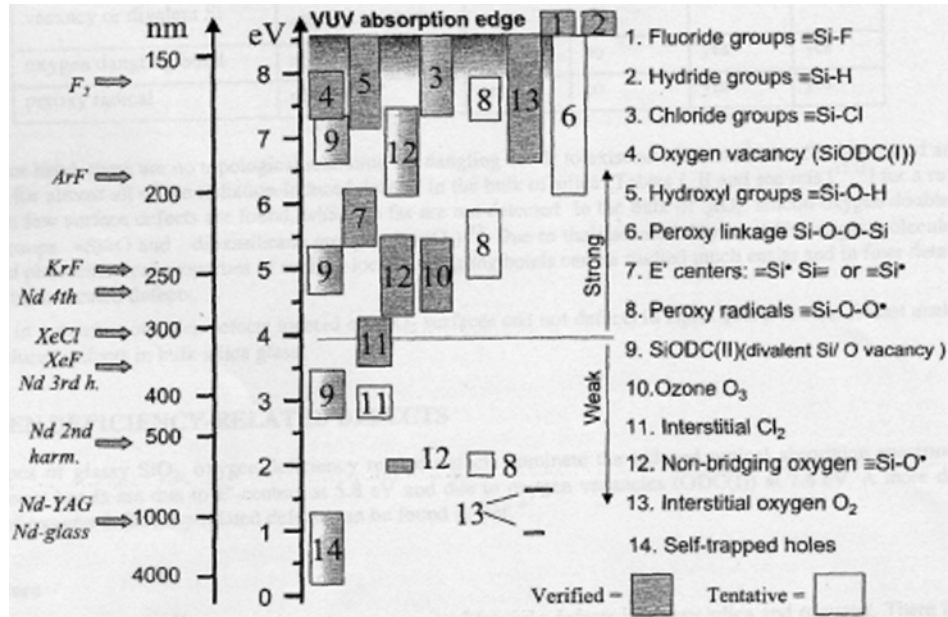


FIG. 3.13 – Principales bandes d'absorption de la silice synthétique et leur correspondance avec les lasers de puissance usuels (tiré des travaux de Skuja et al [40])

Dans ces conditions, l'absorption du rayonnement électromagnétique incident peut engendrer de fortes contraintes thermo-mécaniques au niveau de ces défauts et donc augmenter la possibilité de claquage du matériau. La durée de vie de ces défauts a été caractérisée notamment par des mesures de fluorescence [41]. Ces défauts restent présents dans le matériau pendant quelques millisecondes suivant l'irradiation laser [42, 43]. Néanmoins dans certaines conditions de tests (en particulier en fonction de la température ou du type de matériau), il est possible de mettre en évidence des centres colorés stables dans le temps [42, 44, 45]. Ces centres précurseurs induits par irradiation jouent donc un rôle important lors d'une sollicitation du matériau en tirs répétés (chapitre 6).

#### 3.2.2 Contaminants issus de la fabrication et de l'utilisation des optiques

##### Les résidus de polissage et de découpe des optiques

Une étude récente publiée en 2004 par Gallais et al. [34] tente de remonter aux caractéristiques réelles des défauts mis en cause dans le phénomène d'en-

dommagement laser. Dans l'hypothèse où le claquage du matériau est induit par absorption localisée, ces travaux permettent de donner une estimation de la taille critique et de l'indice complexe de ces centres précurseurs de l'endommagement laser. Ainsi dans le cas de défauts métalliques fortement absorbants, notons qu'une inclusion de 10 nm suffit pour initier l'endommagement alors que dans le cas diélectrique des inclusions de plus de 100 nm sont nécessaires. D'autres études mettent également en avant l'hypothèse d'inclusions absorbantes pouvant se déposer en surface lors de la fabrication du composant optique [36,37]. Les contaminants métalliques peuvent provenir directement des outils utilisés pour la découpe du verre alors que la présence de défauts diélectriques serait la conséquence de l'utilisation d'éléments abrasifs plus ou moins fins lors du polissage. Ce dépôt de contaminants est facilité par l'existence en surface de micro-craquelures engendrées par les contraintes mécaniques qui s'appliquent lors des premières étapes de polissage (abrasion "grossière") [46]. De nombreux travaux [47, 48] décrivent des expériences de mesure de l'épaisseur de cette zone contaminée sur des lames de silice (appelée "couche de passage"). L'ensemble des données bibliographiques fournissent des valeurs allant de 1 à 100  $\mu\text{m}$ . Cette dispersion s'explique essentiellement par l'utilisation de procédés de polissage différents d'une expérience à l'autre. L'étude physico-chimique de la surface d'une lame de silice superpolie par SIMS (Secondary Ion Mass Spectroscopy) permet de mettre en évidence de façon très précise une couche de contamination d'environ 60 nm [49]. Cette couche de passage contient des contaminants issus des outils de découpe (Cu, Al) et des liquides utilisés pour le polissage de la surface ( $\text{CeOx}$ ,  $\text{SiO}_2$ ).

Les mécanismes d'endommagement liés à ces particules absorbantes font l'objet d'études théoriques détaillées depuis plusieurs années. Hopper et al. [50] furent les premiers à calculer l'élévation locale de température due à une inclusion métallique soumise à une irradiation laser nanoseconde. Depuis, différentes équipes travaillent sur le sujet afin de déduire précisément les mécanismes mis en jeu lors de l'irradiation. Nous pouvons citer entre autres les travaux effectués aux États-Unis par Rubenchik et al. [36] ou encore les études menées en France par le CEA/DAM en collaboration avec l'Institut Fresnel [51–53]. Dans ce dernier cas, il s'agit de comprendre les mécanismes réels de l'endommagement à partir d'inclusions modèles de quelques dizaines de nanomètres de diamètre. Cette étude fera l'objet d'une présentation détaillée au chapitre 5.

### Contaminants métalliques et organiques présents sur la surface des optiques

Dans le cas des composants dans les lasers de puissance, le vieillissement ainsi que l'effet de l'environnement lui-même peuvent engendrer une pollution des surfaces optiques en cours d'utilisation. Les contaminants, de taille micro-

### 3.2. ÉTAT DE L'ART SUR L'ORIGINE DES CENTRES PRÉCURSEURS DE L'ENDOMMAGEMENT LASER SOUS IRRADIATION UNIQUE

---

métrique, peuvent conduire à l'endommagement laser du matériau. Différents types de contaminants peuvent apparaître. Citons entre autres, les particules métalliques provenant de la structure mécanique du laser ou encore les particules organiques issues de l'atmosphère environnante.

En ce qui concerne les contaminants métalliques, de nombreux travaux sur le sujet ont permis de confirmer l'influence de ces défauts microniques dans l'endommagement des matériaux. Généralement ces défauts fortement absorbants contribuent au claquage du composant optique par l'intermédiaire de processus thermiques [54]. Néanmoins, dans certains cas, il est possible d'envisager un endommagement suivant un processus de claquage diélectrique. Le calcul rigoureux du champ électromagnétique au voisinage de défauts modèles (particules métalliques de 10 à 250  $\mu\text{m}$ ) montre en particulier que la présence de ces défauts en face avant, peut engendrer une sur-intensification du champ électrique ( $\times 1.5$ ) en face arrière [55, 56] et par conséquent un claquage du matériau à ce niveau.

Notons enfin que la présence de contaminants organiques peut également faire chuter la tenue au flux des composants optiques [57, 58].

#### Défauts de croissance dans les couches minces optiques: exemple des Nodules

Les nodules sont des défauts de croissance des couches minces. Ils sont le plus souvent initiés par la présence de défauts sur la surface du substrat au moment du dépôt. Ces impuretés peuvent être des résidus de polissage ou des contaminants de surface issus de la préparation du substrat (nettoyage). Des agrégats projetés à partir de la cible durant le dépôt peuvent également jouer le rôle de précurseurs. Le recouvrement de ces défauts par des couches successives entraîne une déformation visible de la surface. La figure 3.14 tirée des travaux de thèse de M. Poulingue [59] montre la coupe SEM (Scanning Electron Microscopy) d'un nodule présent dans un empilement de type " $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ ".

De nombreux travaux [60, 61] ont mis en évidence le rôle de ces nodules dans l'endommagement laser des couches diélectriques. De part les contraintes thermomécaniques pouvant exister au niveau du défaut lors de l'irradiation, le nodule peut être éjecté. A forte fluence, la formation d'un cratère peut également être suivie d'une brûlure plasma de la couche diélectrique environnante. Ceci constitue alors une amorce possible à la croissance de l'endommagement sous irradiations multiples.

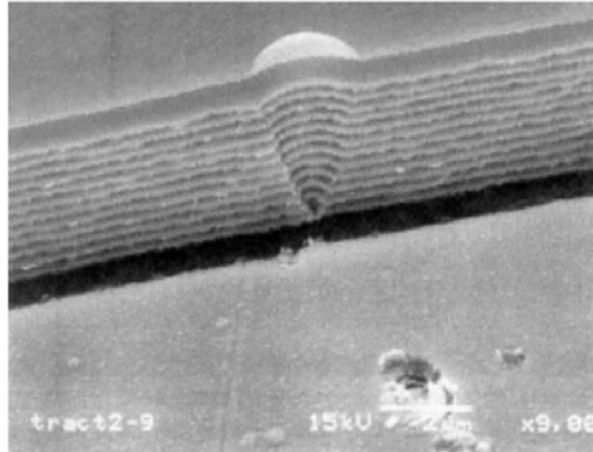


FIG. 3.14 – Nodule observé par microscopie électronique (miroir de type  $HfO_2/SiO_2$ )

### 3.2.3 Effet d'autofocalisation dans les matériaux optiques

Ce dernier paragraphe bibliographique ne traite pas de défauts précurseurs de l'endommagement laser. Il s'agit ici simplement de discuter du rôle possible des phénomènes d'optique non linéaire dans le processus d'endommagement laser du matériau. En effet, dans le cas d'optiques épaisses, il est possible de mettre en évidence, un endommagement continu à partir d'une zone donnée du volume et ceci jusqu'en face arrière (figure 3.15).

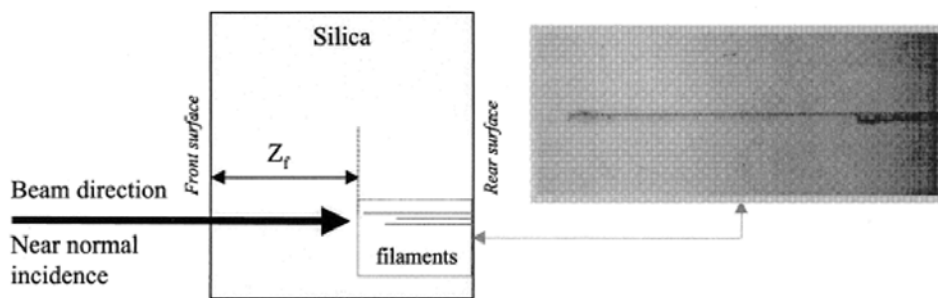


FIG. 3.15 – Observation d'un endommagement de type "filament" dans une lame de silice épaisse (image tirée de [62])

Cette filamentation est le résultat d'un phénomène d'autofocalisation du faisceau laser incident en volume du matériau [62]. Dans le cas d'une impulsion laser de puissance crête élevée, il y a formation d'une lentille d'indice dans la silice

et par conséquent une focalisation supplémentaire du faisceau. Dans ces conditions, la fluence d'irradiation peut dépasser localement le seuil de claquage. Il est donc important que l'expérimentateur prenne en compte ce phénomène lors de la détermination des caractéristiques nominales de l'irradiation.

La simulation de l'interaction d'un faisceau laser gaussien avec un milieu présentant un indice de réfraction non linéaire permet de définir la puissance critique nécessaire à l'apparition de l'effet Kerr [63]:

$$P_{cr} = \frac{c\lambda^2}{32\pi^2 n_2} \quad (3.12)$$

Notons ici, que ce phénomène est difficilement prévisible car l'énergie du faisceau laser incident est mesurée en amont du composant optique. Dans notre cas, nous veillerons donc à ne jamais dépasser cette puissance critique. Le phénomène d'autofocalisation pourra ainsi être négligé. Dans l'ensemble de nos mesures, cela revient à considérer que les valeurs de fluences mesurées en amont des composants à tester sont applicables aussi bien en face avant, en volume et en face arrière.

Dans le cas où les conditions d'autofocalisation seraient atteintes, des études théoriques menées par Soileau et al. [64] puis Klein [65] permettent de définir les corrections à apporter pour tenir compte de ce phénomène. La connaissance de la fluence d'irradiation en tout point du matériau permet alors d'éviter l'apparition d'endommagements par filamentation.

### 3.3 Influence du polissage sur la tenue au flux laser des composants optiques

Le travail présenté ici est le fruit d'une collaboration avec la Société Européenne des Systèmes Optiques (SESO - Aix en Provence) dans le but de réaliser des composants en silice présentant une haute tenue au flux à 355 nm.

#### 3.3.1 Introduction

Les procédés de polissage actuels permettent de conférer aux optiques traitées de très hautes qualités surfaciques. Ainsi, les techniques dites de "superpoli" permettent aujourd'hui d'atteindre des rugosités de l'ordre de 0.1 nm dans le cas des lames de silice. Or les spécifications de plus en plus drastiques des composants optiques pour les lasers de puissance nécessitent un développement continu de nouveaux procédés de polissage.

La figure 3.16 est un exemple de courbes de probabilité d'endommagement laser mesurées à 355 nm en surface de deux lames de silice Suprasil polies suivant des procédés différents.

Des différences importantes de tenue au flux laser suivant le procédé de polissage utilisé apparaissent ici. Par exemple, dans le cas d'une irradiation à 35 J/cm<sup>2</sup>,



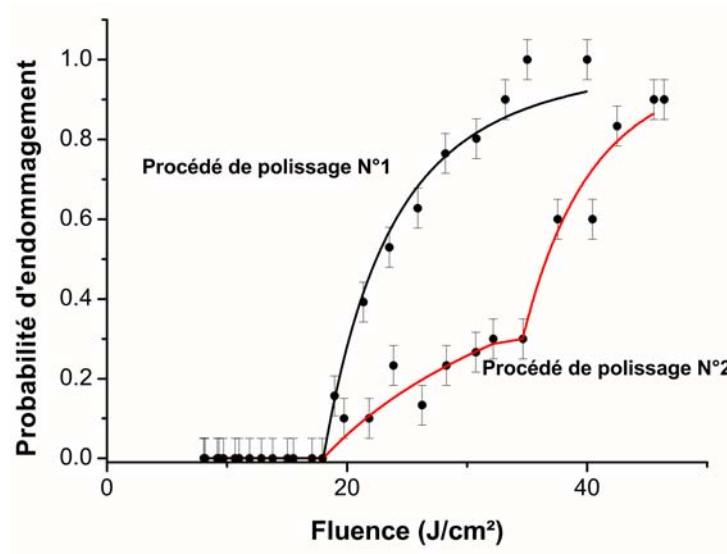


FIG. 3.16 – Influence du procédé de polissage sur la tenue au flux laser d'une silice "superpolie"

l'optique polie suivant le procédé N°1 s'endommage pour chaque tir ( $p=1$ ) alors celle obtenue avec le procédé N°2 ne s'endommage qu'une fois sur deux ( $p=0.5$ ).

Ce résultat préliminaire montre donc clairement l'influence du procédé de polissage sur la tenue au flux laser des composants optiques. Nous pouvons supposer que le choix du procédé de polissage influe sur la nature physico-chimique, la taille ainsi que sur la quantité des centres précurseurs responsables de l'endommagement laser en surface.

### 3.3.2 Description des procédés de polissage

Les outils utilisés pour la découpe des lames de silice ainsi que les feutres en rotation utilisés pour l'abrasion grossière de la surface (douce et rodage) engendrent des contraintes mécaniques importantes au niveau des surfaces. D'un point de vue macroscopique, ceci se traduit par l'apparition de craquelures sur une épaisseur de l'ordre d'une dizaine de microns (figure 3.17).

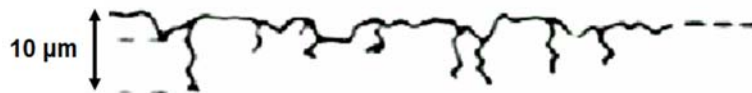


FIG. 3.17 – Schéma des craquelures pouvant exister en surface des lames de silice "brutes"

### 3.3. INFLUENCE DU POLISSAGE SUR LA TENUE AU FLUX LASER DES COMPOSANTS OPTIQUES

---

Les techniques de polissage permettent donc de rendre cette surface la plus plane et la plus homogène possible. Pour cela différentes étapes sont nécessaires:

- (1): La rugosité de surface est diminuée à l'aide de particules abrasives en suspension dans un liquide. Les tailles varient de quelques centaines de microns pour les premières étapes jusqu'à quelques nanomètres pour l'ultime passage nécessaire à l'obtention d'une surface superpolie.
- (2): Les craquelures de surface sont "colmatées" à l'aide de produits appropriés afin de rendre le matériau le plus homogène possible.
- (3): Finalement, les produits en excès présents sur la surface sont éliminés durant une étape de nettoyage.

Dans le cas des particules abrasives de grosse taille utilisées au début du processus, nous pouvons aisément penser qu'elles ne peuvent en aucun cas être piégées dans les craquelures dont la dimension ne dépasse pas quelques microns. Par conséquent, ces contaminants ne peuvent pas être considérés comme des précurseurs potentiels de l'endommagement laser. Par contre, lors des étapes finales de colmatage, d'abrasion fine et de nettoyage de la surface, les particules de taille nanométrique peuvent, quant à elles, facilement aller se nicher dans ces craquelures. On assiste alors à l'apparition d'une zone surfacique fragilisée appelée "couche de passage" et contenant des impuretés susceptibles d'engendrer le claquage du matériau au cours d'une irradiation laser (figure 3.18).

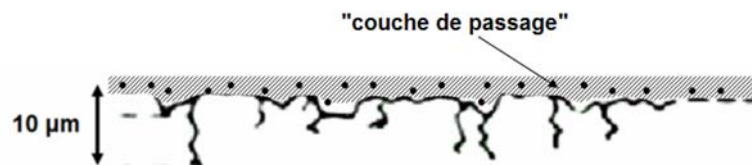


FIG. 3.18 – Schéma de la surface d'une lame de silice après polissage

Cette hypothèse est confortée par l'observation après des irradiations répétées de la surface d'une silice superpolie. La figure 3.19 illustre la qualité de la surface loin du dommage induit par le faisceau laser. L'onde de choc créée lors de l'irradiation permet d'éliminer partiellement cette "couche de passage" et donc de révéler ces rayures présentes en surface (image Nomarski). L'étude par microscopie à force atomique permet également de mettre en évidence des clusters de matière.

Au regard de l'ensemble de ces données, nous avons caractérisé la tenue au flux laser des différentes solutions utilisées par les polisseurs et corrélié ces résultats à la tenue au flux des surfaces optiques associées.

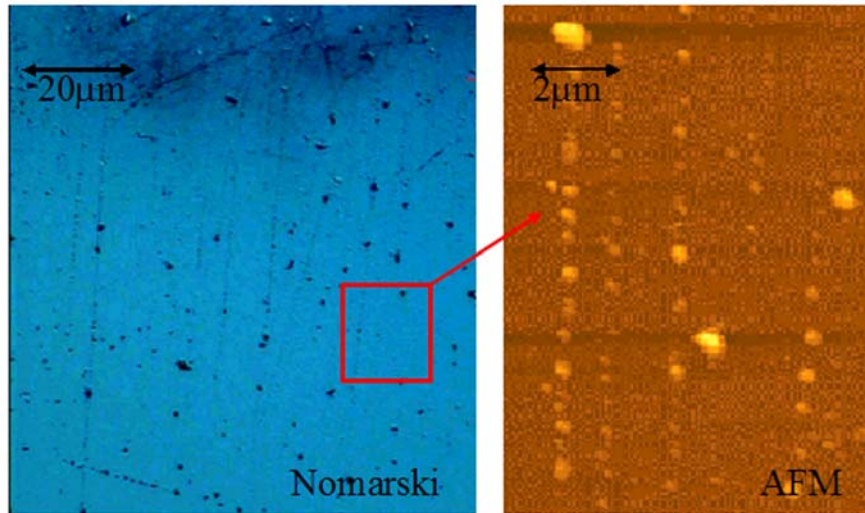


FIG. 3.19 – Images obtenues en microscopie optique et à force atomique de craquelures révélées en surface lors d'une irradiation laser

### 3.3.3 Caractérisation des particules présentes dans les liquides de polissage

L'endommagement laser dans les liquides est un phénomène peu connu mais toutefois utilisé dans divers applications. Nous pouvons citer par exemple la spectroscopie [66] ou encore la mesure de concentration d'impuretés dans les liquides [35,67]. Ici, nous allons utiliser cette méthode dans le but d'associer aux particules en suspension dans les liquides de polissage un seuil de claquage sous irradiation laser [29].

Expérimentalement, l'irradiation provoque une absorption puis un claquage caractérisé par l'apparition simultanée d'un plasma et d'une onde acoustique [68]. Pour des raisons pratiques, la détection de l'endommagement est ici effectuée grâce à l'onde acoustique. Pour cela, un microphone est placé au-dessus d'une éprouvette en quartz contenant le liquide à tester (cf. chapitre 2). Dans ces conditions, il est possible d'obtenir au même titre que pour les substrats optiques une courbe de probabilité d'endommagement en fonction de la fluence d'irradiation. Le modèle statistique peut également être appliqué, ce qui permet de définir pour chaque type d'impureté mis en évidence un seuil de claquage ainsi qu'une densité caractéristique (figure 3.20).

Les ruptures de pentes observées figure 3.20 mettent en évidence la présence de trois types d'impuretés différents. Leurs caractéristiques sont résumées dans le tableau 3.1.

### 3.3. INFLUENCE DU POLISSAGE SUR LA TENUE AU FLUX LASER DES COMPOSANTS OPTIQUES

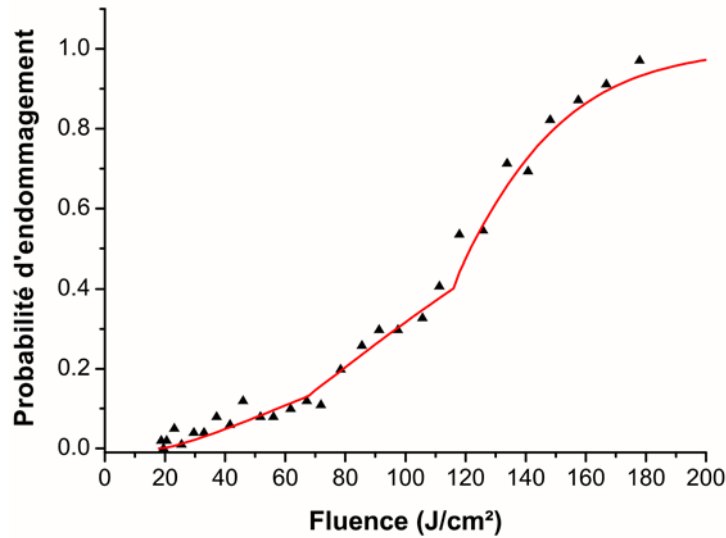


FIG. 3.20 – Courbe de probabilité d'endommagement mesurée à 355 nm dans un liquide de polissage

	Seuil de claquage ( $J/cm^2$ )	Densité relative ( $def/mm^3$ )
défaut "1"	18	$8.10^2$
défaut "2"	40	$5.10^3$
défaut "3"	89	$6.10^4$

TAB. 3.1 – Caractéristiques des impuretés détectées par endommagement laser

Afin de se mettre dans des conditions favorables aux tests d'endommagement laser, les liquides utilisés lors du polissage sont dilués à l'aide d'eau déionisée. La densité définie précédemment (tableau 3.1) n'a donc aucune valeur réelle. Cependant, la connaissance des proportions de dilution permet, si on le désire, de remonter à la densité réelle d'impuretés. Dans notre cas, seul le seuil bas de claquage apporte des renseignements utiles à la compréhension des phénomènes mis en jeu.

La figure 3.21 regroupe les seuils de claquage des différentes impuretés détectées à 355 nm dans les liquides de polissage utilisés en routine par les polisseurs. Pour chaque liquide, la présence d'un type d'impuretés est symbolisée par une barre dont la hauteur équivaut au seuil d'endommagement laser.

Des mesures similaires effectuées sur l'eau déionisée (liquide de dilution utilisé dans cette expérience) mettent en évidence l'existence de deux races de défauts avec des seuils de claquage respectivement de 120 et 150  $J/cm^2$ . Dans ces conditions, nous pouvons assurer que les résultats obtenus sur les liquides de polissage ne sont pas masqués par les impuretés pouvant exister dans le liquide de dilution. Par conséquent ces résultats sont représentatifs du claquage des particules en

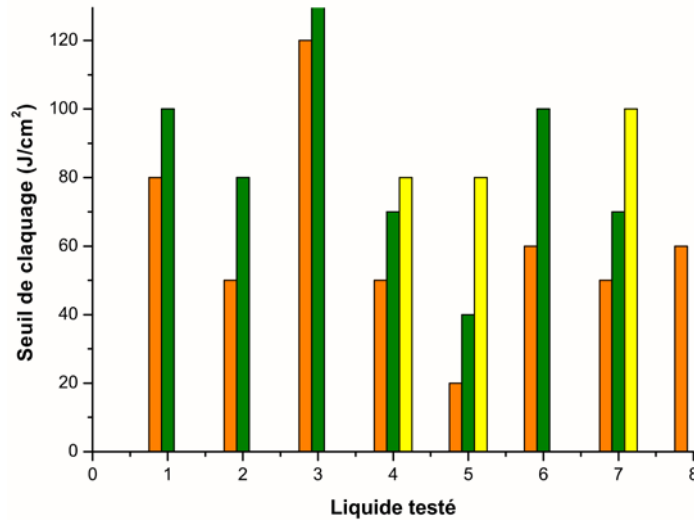


FIG. 3.21 – *Seuils de claquage mesurés à 355 nm pour les différentes impuretés en suspension dans les liquides de polissage*

suspension présentes dans les liquides utilisés au cours du processus de polissage.

### 3.3.4 Corrélation entre les précurseurs de l'endommagement laser en surface de lames de silice et les impuretés présentes dans les liquides de polissage associés

Parallèlement à l'étude précédente, nous avons mesuré la tenue au flux laser à 355 nm des surfaces des lames de silice polies à l'aide de ces différentes solutions. Les résultats obtenus sur des échantillons superpolis issus de deux procédés différents sont présentés figure 3.22.

Nous avons ici l'exemple de l'influence des procédés de polissage sur la tenue au flux laser des optiques. La connaissance des liquides de polissage utilisés pour chacun des procédés nous permet d'effectuer une corrélation entre les défauts qui initient le claquage en surface de ces lames de silice et les impuretés présentes en suspension dans les liquides de polissage associés. Pour effectuer cette comparaison, nous faisons, de plus, l'hypothèse forte que le comportement d'un centre précurseur de l'endommagement laser ne dépend pas du milieu dans lequel il se trouve. En d'autres termes, cela signifie qu'un précurseur aura le même seuil de claquage vis à vis de l'irradiation laser qu'il soit dans une matrice d'eau ou de silice. Dans ces conditions, il est alors possible d'effectuer une corrélation en se basant sur les seuils de claquage de chacun des défauts mis en évidence.

Le tableau 3.2 détaille les liquides utilisés lors des trois dernières étapes de chacun des deux procédés étudiés ici.

### 3.3. INFLUENCE DU POLISSAGE SUR LA TENUE AU FLUX LASER DES COMPOSANTS OPTIQUES

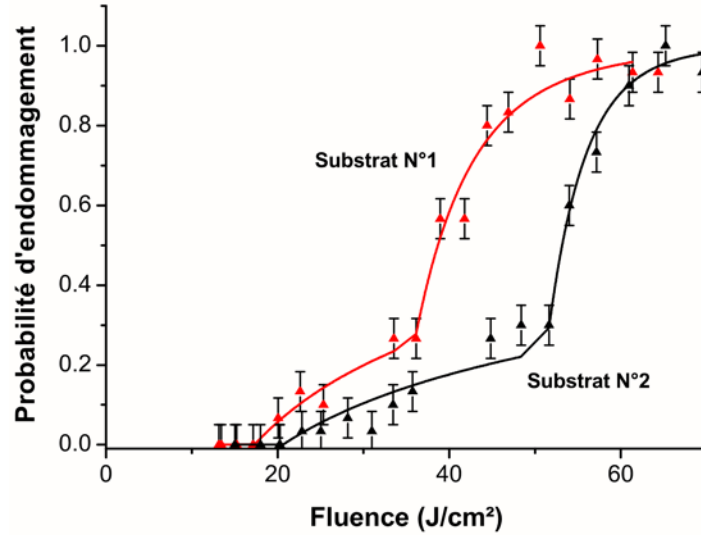


FIG. 3.22 – Courbes de probabilité d'endommagements obtenues à 355 nm en surface de deux lames de silice polies à l'aide des liquides analysées

	Liquides utilisés
Substrat N°1	3 et 5
Substrat N°2	1, 4 et 5

TAB. 3.2 – Liquides utilisés lors des trois dernières étapes du polissage

- Pour les deux échantillons de silice testés, le seuil bas d'endommagement est similaire ( $20 \text{ J/cm}^2$ ). Cette valeur correspond au seuil de claquage de l'impureté la plus pénalisante détectée dans les liquides de polissage associés (liquide N°5). Ce liquide étant utilisé dans les deux procédés de polissage étudiés ici, nous pouvons facilement envisager que son retrait au profit d'un autre produit moins pénalisant pour la tenue au flux laser, pourrait améliorer de façon significative le seuil bas d'endommagement des optiques ainsi polies. Malheureusement, nous n'avons pas encore de retour d'expérience à ce niveau.
- Le second type de précurseur mis en évidence sur les optiques diffère d'un substrat à l'autre. Ce résultat est cohérent avec le fait que, outre le liquide N°5, les deux composants n'ont pas été en contact avec les mêmes liquides de polissage. Dans le cas du substrat N°2, il est possible de corréliser ce second précurseur ( $\text{LIDT} = 50 \text{ J/cm}^2$ ) avec un type d'impuretés présent dans le liquide N°4 qui a également un seuil de claquage autour de  $50 \text{ J/cm}^2$ .
- En ce qui concerne le substrat N°1, le second défaut mis en évidence ne

peut pas être corrélé. Dans ce cas, il est possible que le défaut soit la conséquence d'une contamination extérieure pendant ou après le polissage. Seules des analyses chimiques ou de structure du matériau pourraient nous renseigner sur la nature de ce précurseur de l'endommagement laser.

La figure 3.23 résume la corrélation pouvant être proposée entre les précurseurs de l'endommagement laser à 355 nm en surface des verres de silice superpolis et les impuretés en suspension présentes dans les liquides de polissage associés.

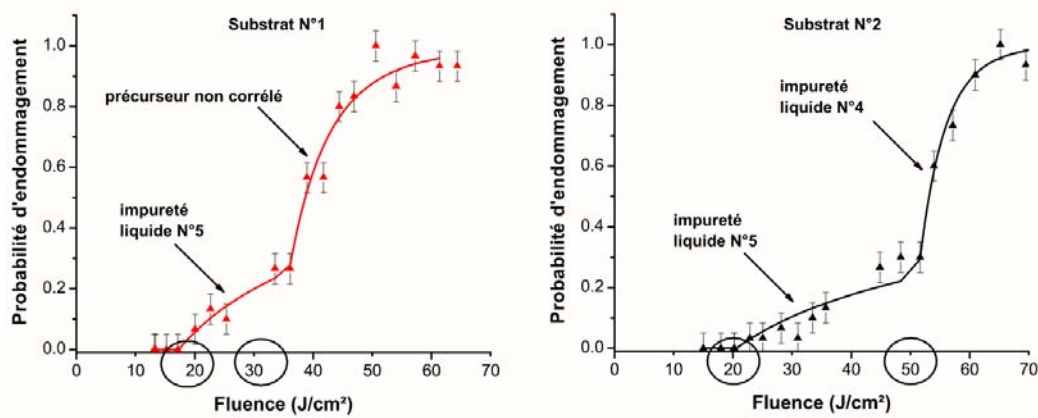


FIG. 3.23 – Corrélation entre les précurseurs de l'endommagement laser en surface de verres de silice et impuretés présentes dans les liquides de polissage associés

### 3.4 Conclusion

L'endommagement laser des matériaux optiques est le résultat d'un enchaînement de différents phénomènes physiques pouvant apparaître lors de l'interaction laser-matière. Le claquage diélectrique est le mécanisme fondamental de l'endommagement du matériau parfait. Cependant, les faibles seuils de claquage observés expérimentalement indiquent que le phénomène s'initie sur des zones fragilisées du matériau. Le couplage d'une métrologie fine de l'endommagement laser et d'un modèle statistique approprié nous a permis dans ce travail de valider l'hypothèse des centres précurseurs de l'endommagement laser dans différents matériaux (KDP, silice massive et en couche mince), notamment en étudiant l'influence du diamètre du faisceau d'irradiation sur la tenue au flux.

L'état de l'art présenté dans ce chapitre a clairement montré que l'origine et la nature physico-chimique de ces défauts pouvaient être diversifiées rendant ainsi

difficile leur identification.

Expérimentalement, nous avons étudié avec précision l'influence du polissage sur l'endommagement de surface de lames de silice. Nous avons pu montrer que les défauts initiateurs de ces endommagements sont fortement liés aux impuretés présentes en suspension dans les liquides de polissage. Un retour sur expérience reste tout de même nécessaire pour quantifier d'éventuelles améliorations de tenue au flux liées à la suppression ou à la modification de certaines étapes des procédés utilisés.

Les densités de défauts mesurées ici par méthode destructive sont très faibles aussi bien pour les substrats que pour les couches minces diélectriques. Expérimentalement, elles ont été estimées à environ 1 défaut pour  $100 \mu m^2$ . Cependant, si nous faisons l'hypothèse d'une distribution homogène de défauts dans le matériau, cela signifie que la distance entre deux défauts est grande devant la taille du défaut. Par conséquent, les centres précurseurs de l'endommagement peuvent être considérés comme isolés et le problème de leur détection devient un problème de détection d'une particule unique.



## Chapitre 4

# Détection non-destructive des centres précurseurs de l'endommagement laser

Dans le but de comprendre le rôle des nano-défauts absorbants dans l'initiation de l'endommagement laser, nous développons un dispositif de microscopie photothermique "haute résolution" selon les trois directions. Dans un premier temps, nous étudions la limite théorique de résolution du dispositif afin d'estimer la taille du plus petit défaut isolé absorbant détectable. Nous montrons ensuite comment l'ajout d'un module "haute-résolution" permet de détecter automatiquement et de manière non destructive des défauts absorbants jusqu'à une taille de 50 nm dans la configuration actuelle. Nous décrivons également le couplage de ce dispositif à un banc d'endommagement laser afin de suivre de façon in-situ l'évolution de l'absorption de ces "défauts" en fonction de l'irradiation laser.

## **4.1 État de l'Art concernant la détection non destructive des défauts dans les matériaux optiques**

Comme nous l'avons vu dans le chapitre précédent, l'endommagement laser des matériaux optiques est un phénomène localisé associé à la présence de défauts isolés de taille micronique et sub-micronique. Les variations locales des propriétés optiques ou thermiques induites par ces défauts lors d'une irradiation laser peuvent engendrer le claquage du matériau. La compréhension des mécanismes d'initiation de l'endommagement laser passe donc nécessairement par la détection non destructive de ces centres précurseurs et par le suivi des modifications du matériau induites sous flux. Pour arriver à combiner l'ensemble de ces observations, le développement de dispositifs présentant une haute résolution spatiale et une grande détectivité semble incontournable. De nombreuses techniques sont actuellement proposées afin de mettre en évidence les défauts dans les composants optiques sans avoir à les révéler par endommagement laser. Parmi elles, nous pouvons citer la microscopie optique utilisée en mode "champ sombre" ou en mode "Nomarski", la microscopie à force atomique [69, 70], la microscopie électronique à balayage [71, 72] ou encore la diffusion [73–75]. Toutes ces techniques sont sensibles principalement aux inhomogénéités de structure ou d'indice du matériau.

Nous avons également montré au chapitre 3 que les inhomogénéités d'absorption (contaminants métalliques, nodules, centres colorés) jouent un rôle majeur dans le processus d'endommagement laser des matériaux optiques. Or l'ensemble des techniques décrites jusque là sont incapables de réaliser une détection à partir de ce critère. Pour les défauts absorbants présents en surface et en volume des matériaux optiques, la détection non destructive peut donc être réalisée à l'aide de l'effet photothermique induit par l'absorption du défaut lui-même. Notons que une analyse de ces matériaux par fluorescence [76–78] peut également s'avérer complémentaire puisqu'elle permet d'extraire la nature physico-chimique de certains contaminants absorbants de surface et de suivre temporellement les modifications du matériau induites sous flux (apparition de centres colorés E' et NBOHC lors d'illuminations dans l'UV profond par exemple) [41].

### **4.1.1 La déflexion photothermique**

Les méthodes de déflexion photothermique sont classiquement utilisées pour quantifier l'absorption des composants optiques. Le principe est le suivant: l'échantillon à caractériser est chauffé à l'aide d'un laser pompe modulé en intensité. L'élévation périodique de température induite par l'absorption optique du matériau conduit à la formation d'un gradient d'indice local. Un faisceau sonde de

faible puissance traversant la zone chauffée est alors dévié proportionnellement à l'absorption. Différentes configurations de mesure sont possibles comme le montre la figure 4.1.

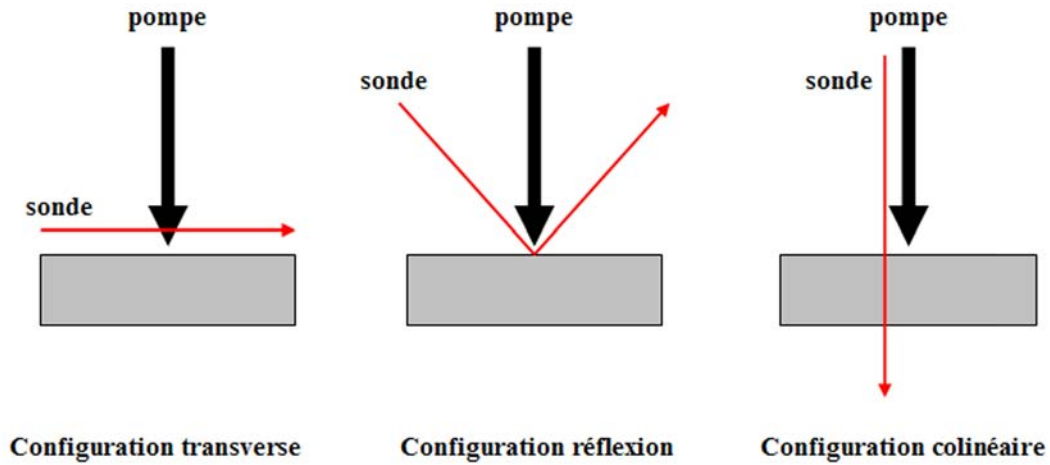


FIG. 4.1 – Schéma de principe de la déflexion photothermique dans trois configurations usuelles

- Dans la configuration dite "transverse" [79,80], le faisceau sonde se propage dans l'air parallèlement à l'échantillon. Il est dévié uniquement par le gradient d'indice dans l'air dû à l'échauffement de la surface.
- Dans la configuration en "réflexion" [81,82], la mesure de la déformation de la surface permet d'obtenir de bons résultats dans l'évaluation de l'absorption optique de la surface du composant (couches minces diélectriques par exemple).
- Dans la configuration dite "colinéaire" [83–85], on mesure la déflexion du faisceau sonde transmis. Le faisceau est donc sensible aux gradients d'indice dans l'air et dans le substrat. Contrairement aux deux premières techniques, cette configuration permet de mettre en évidence les inhomogénéités d'absorption présentes aussi bien en surface qu'en volume d'un composant optique. Une étude approfondie de cette méthode a fait l'objet de la thèse de A.During [4] soutenue en 2002 à l'Institut Fresnel.

#### 4.1.2 Application de l'effet photothermique à la détection des centres précurseurs de l'endommagement laser

Les premiers travaux publiés sur ce sujet datent de 1993 [86]. Les défauts absorbants présents dans les empilements diélectriques sont caractérisés par photothermie puis couplés aux sites précurseurs de l'endommagement laser. Plusieurs études ont permis par la suite de confirmer ces résultats en corrélant l'endommagement laser des couches minces optiques à la présence des nodules de taille micrométrique [87–89].

Cependant avec l'amélioration des techniques de fabrication des composants optiques (polissage, dépôt, ...), la concentration et la taille de ces défauts absorbants ont fortement diminuées. L'endommagement laser de ces composants optiques est aujourd'hui dû à la présence de défauts de taille sub-micronique qui ne peuvent pas être mis en évidence par les techniques classiques de photothermie. Dans ce contexte, des travaux ont été réalisés afin de développer des outils photothermiques avec une haute-résolution spatiale et une forte détectivité:

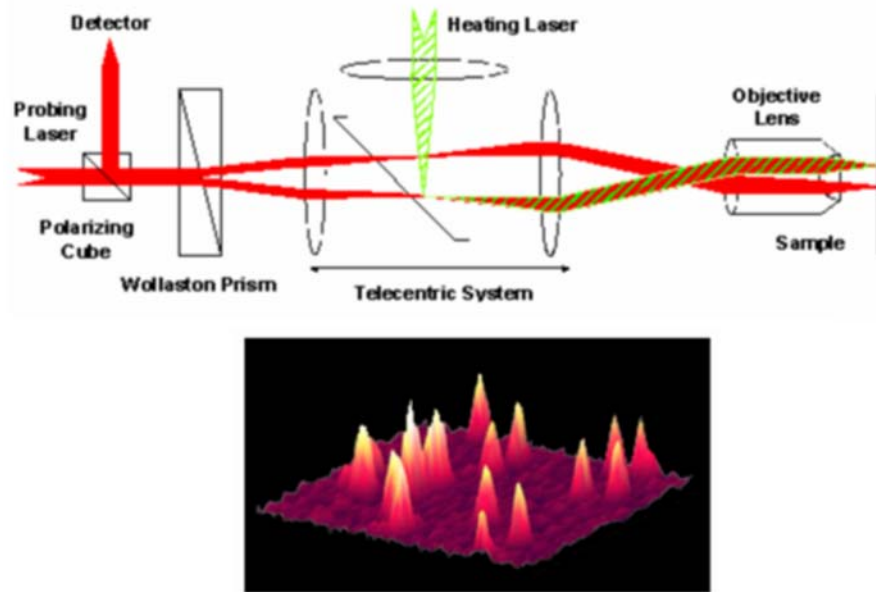


FIG. 4.2 – *Détection photothermique de billes d'or de 5 nm (image tirée des travaux de Boyer et al. [90])*

(1): Le système développé au CPMOH ( Centre de Physique Moléculaire et Hertzienne - Bordeaux) s'appuie sur une méthode photothermique utilisant le contraste de phase interférentiel [90]. Cette technique, très sensible aux variations

de l'indice optique du milieu étudié permet de détecter des éléments métalliques de quelques nanomètres de diamètre (figure 4.2). Néanmoins, cette méthode ne peut s'appliquer que dans le cas de défauts de surface.

(2): Le dispositif développé à l'Institut Fresnel durant la thèse de A. Durning [91] reprend le principe de la déflexion photothermique. La configuration colinéaire permet donc d'étudier à la fois les défauts de surface et les défauts de volume. La résolution et la sensibilité ont été améliorées en focalisant les faisceaux pompe et sonde sur l'échantillon à caractériser (microscope photothermique). Plusieurs points importants sur la corrélation défauts absorbants/centres précurseurs de l'endommagement laser ressortent de cette étude:

- L'utilisation d'une longueur d'onde unique pour l'irradiation et la cartographie photothermique du matériau est nécessaire afin de corréler correctement les phénomènes.
- Expérimentalement, la détection à l'aide d'un faisceau pompe de 40 microns de diamètre met en évidence des densités de défauts absorbants beaucoup plus faibles que celles extraites des mesures destructives (1 défaut pour 100  $\mu m^2$ ). En fait, dans ces conditions la taille du faisceau pompe est telle que l'absorption mesurée sur un pixel correspond à une moyenne sur plusieurs dizaines de précurseurs. Ainsi, pour un défaut absorbant de façon isolée, il est nécessaire de réduire encore le diamètre du faisceau pompe.
- Les premiers résultats avec un faisceau pompe de 1  $\mu m$  à  $1/e^2$ , ont alors montré qu'il était possible de détecter des billes d'or isolées de 600 nm de diamètre.

(3): Une troisième voie consiste à réaliser un moyen de caractérisation photothermique dans lequel le faisceau laser responsable de l'endommagement devient le faisceau excitateur. Cette idée a été développée dans le cadre de la déflexion pulsée [86,92]. Le faisceau pompe (continu et modulé temporellement) du microscope photothermique est remplacé par le même laser pulsé que celui utilisé lors des tests d'endommagement. L'utilisation de la même longueur d'onde pour le faisceau d'irradiation et pour le faisceau pompe permet de mettre en évidence les défauts absorbants précurseurs de l'endommagement laser. Cependant le régime pulsé impose un faible niveau de signal, ce qui freine le développement de cette méthode.

### **4.1.3 Bilan sur la détection des défauts absorbants responsables de l'endommagement laser**

La détection des défauts absorbants nanométriques responsables de l'endommagement laser dans les composants optiques ultra-purs passe donc nécessairement par l'amélioration des techniques de photothermie actuelles. Au vu de l'étude bibliographique présentée ici, trois améliorations doivent être prises en compte:

- Afin de détecter les réels centres précurseurs de l'endommagement laser, l'étude non destructive doit se rapprocher des conditions d'utilisation du composant optique. Il est donc nécessaire d'utiliser un faisceau excitateur (faisceau pompe) dont les caractéristiques (longueur d'onde, régime pulsé ou continu) sont proches de celles du laser d'irradiation.
- Du fait de la très faible densité des nano-défauts absorbants, la détection devient un problème de détection de particules uniques. Compte tenu de la distance moyenne entre deux défauts, l'utilisation d'un faisceau pompe fortement focalisé s'impose afin d'obtenir la haute résolution spatiale désirée.
- L'amélioration de la détectivité semble également nécessaire pour la détection des plus petits défauts absorbants présents dans les matériaux optiques.

La prise en compte de ces différents points nous a donc conduit à améliorer le pouvoir de détection du microscope photothermique développé à l'Institut Fresnel.

## **4.2 Détection expérimentale des défauts responsables de l'endommagement laser**

### **4.2.1 Résolution spatiale**

Nous étudions ici la capacité du microscope photothermique à détecter un défaut absorbant isolé de petite taille. Pour cela, nous calculons sa limite de détection théorique dans le cas d'une particule unique.

#### **Résolution latérale**

La taille du plus petit défaut détectable est donnée par la distance séparant deux zones de niveau de contraste discernable. Dans le cas de la détection d'un défaut isolé de forte absorption, ceci se traduit par le plus petit pas d'échantillonnage pour lequel la variation d'absorption mesurée entre les deux points adjacents

est supérieure ou égale au bruit.

Soit  $P(r)$  la répartition d'intensité du faisceau pompe. Notons alors  $P_0$  la puissance incidente et  $a$  le rayon de ce faisceau à  $1/e^2$ . On alors:

$$P(r) = \frac{2P_0}{\pi a^2} \cdot \exp\left(-\frac{2r^2}{a^2}\right) \quad (4.1)$$

Soit  $DA(r)$  la fonction décrivant la densité surfacique d'absorption du défaut. La densité d'absorption réellement mesurée  $DA_{mes}(r)$  est alors donnée par le produit de convolution suivant:

$$DA_{mes}(r) = DA(r) \otimes \frac{P(r)}{P_0} \quad (4.2)$$

Considérons le cas où le défaut à détecter est très petit devant la largeur du faisceau pompe. Dans ce cas, la densité d'absorption mesurée s'exprime de la façon suivante:

$$DA_{mes}(r) = A\delta(r) \otimes \frac{P(r)}{P_0} = \frac{A}{\pi a^2} P(r) \quad (4.3)$$

Où  $A$  est l'absorption totale du défaut centré en  $r=0$ .

La valeur de l'absorption totale mesurée  $A_{mes}(r)$  est la densité d'absorption mesurée  $DA_{mes}(r)$  intégrée sur la surface éclairée par le faisceau pompe. Dans ces conditions on obtient:

$$A_{mes}(r) = \frac{\pi a^2}{P_0} A \cdot P(r) = A \exp\left(-\frac{2r^2}{a^2}\right) \quad (4.4)$$

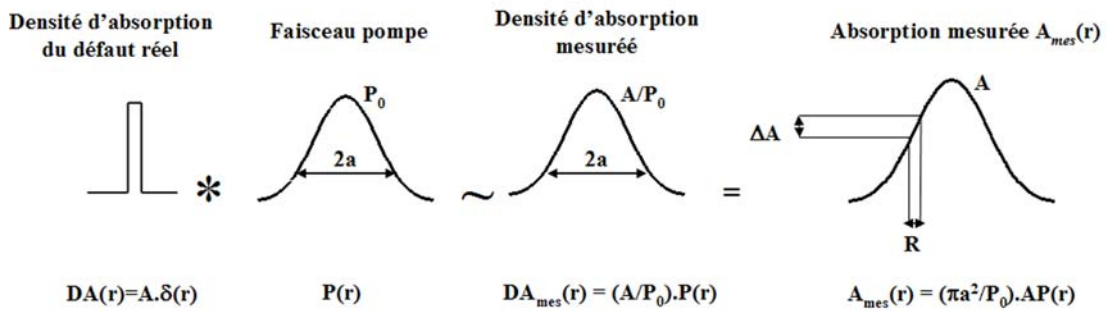


FIG. 4.3 – Détermination du profil d'absorption mesuré dans le cas d'un défaut de petite taille devant le faisceau pompe

La meilleure sensibilité pour la détection d'un défaut isolé (c'est dire la plus grande variation de l'absorption pour le plus petit pas d'échantillonnage  $R$ ) est

## 4.2. DÉTECTION EXPÉRIMENTALE DES DÉFAUTS RESPONSABLES DE L'ENDOMMAGEMENT LASER

---

obtenue au niveau de la pente maximale du profil d'absorption mesuré (figure 4.3). Dans le cas d'un profil gaussien, cette condition est réalisée en  $r = \pm a/2$ . Dans ces conditions, la variation d'absorption ( $\Delta A$ ) entre deux points de mesure est liée au pas d'échantillonnage ( $R$ ) par les relations 4.5 et 4.6.

$$\Delta A = R \frac{dA_{meas}}{dr} (r = a/2) \quad (4.5)$$

$$\Rightarrow R = a \frac{\sqrt{e}}{4} \frac{\Delta A}{A} = a \frac{\sqrt{e}}{4} \frac{1}{A/\Delta A} \quad (4.6)$$

Comme nous pouvons le voir ici, le pouvoir de résolution du microscope photothermique est limité d'une part par le bruit de mesure ( $\Delta A$ ) et d'autre part par le rayon du faisceau pompe ( $a$ ). Pour un rapport "signal sur bruit" ( $\frac{A}{\Delta A}$ ) de l'ordre de 20 et un faisceau pompe de diamètre  $1\mu\text{m}$  à  $1/e^2$ , la limite de détection de particules absorbantes isolées est de 20 nanomètres dans le cas d'un pas d'échantillonnage équivalent.

Dans la pratique, l'absorption d'une particule décroît fortement avec sa taille. Par conséquent, dans le cas d'inhomogénéités d'absorption de quelques dizaines de nanomètres, le rapport "signal sur bruit" ( $\frac{A}{\Delta A}$ ) diminue, faisant ainsi chuter le pouvoir de résolution du microscope photothermique.

### Résolution en profondeur

La configuration colinéaire permet d'être sensible aux inhomogénéités d'absorption présentes aussi bien en surface qu'en volume des matériaux optiques transparents. Il suffit en effet de focaliser les faisceaux pompe et sonde dans la zone d'intérêt.

La résolution en profondeur dépend essentiellement de l'ouverture du faisceau pompe. Pour exemple, nous avons tracé figure 4.4, la composante modulée ( $f=1$  kHz) de la distribution de température dans un échantillon de type "couche mince ( $e=500$  nm) + substrat" pour deux tailles de faisceau pompe et dans le cas où seule la couche mince est absorbante. Il apparaît que dans le cas d'un faisceau de  $1\mu\text{m}$ , l'élévation de température reste concentrée dans le film absorbant ce qui n'est pas le cas pour le faisceau large ( $a = 100\mu\text{m}$ ). Afin de décorréler et d'étudier séparément les contributions photothermiques de la surface et du volume, l'utilisation d'un faisceau fortement focalisé ( $1\mu\text{m}$  à  $1/e^2$ ) est donc utile. Ainsi, dans le cas de défauts absorbants isolés, la focalisation du faisceau pompe permet d'obtenir une élévation de température dans le matériau uniquement dans une zone localisée autour du défaut.



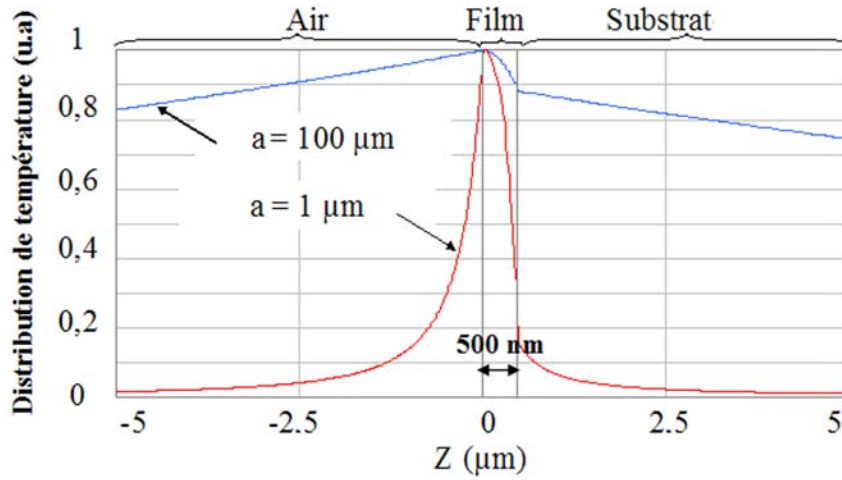


FIG. 4.4 – Calcul de la distribution théorique de température en fonction de la taille du faisceau pompe

#### 4.2.2 Microscope photothermique haute résolution 3D

Le microscope photothermique décrit figure 4.5 a été développé pour fonctionner en mode colinéaire. Dans cette configuration, le faisceau pompe et le faisceau sonde sont parallèles et focalisés à travers le même objectif et ont donc approximativement la même taille au niveau de l'échantillon à tester. Différentes optiques de focalisation peuvent être choisies suivant les diamètres de faisceau désirés. Typiquement, il est possible d'obtenir des spots d'irradiation dont la taille peut varier de 1 à 100  $\mu\text{m}$  à  $1/e^2$ . Pour les études qui nous intéressent ici (détection de défauts nanométriques isolés), seule la configuration où le faisceau pompe est fortement focalisé (1  $\mu\text{m}$  à  $1/e^2$ ) est utilisée.

L'échantillon à caractériser est chauffé par le laser pompe modulé en intensité (fréquence de modulation de l'ordre de quelques kilohertz). L'élévation de température induite par l'absorption du matériau conduit à la formation d'un gradient d'indice. Ce dernier entraîne la déviation du faisceau sonde de faible puissance traversant la zone chauffée. Il est alors possible de mesurer la déviation de ce faisceau à l'aide d'une photodiode quatre quadrants et d'une détection synchrone. On peut alors déduire la valeur locale de l'absorption à partir de la mesure du module de cette déviation et d'une procédure d'étalonnage adaptée [4]. Avec une telle configuration, un niveau d'absorption de  $10^{-5}$  est mesurable. L'échantillon est monté sur des platines de translation permettant une cartographie de la zone étudiée. Deux types de moteurs sont actuellement accessibles:

- D'une part, des platines mécaniques ayant une résolution de 0.1  $\mu\text{m}$  permettent de cartographier latéralement des zones de grande taille (quelques centimètres).

## 4.2. DÉTECTION EXPÉRIMENTALE DES DÉFAUTS RESPONSABLES DE L'ENDOMMAGEMENT LASER

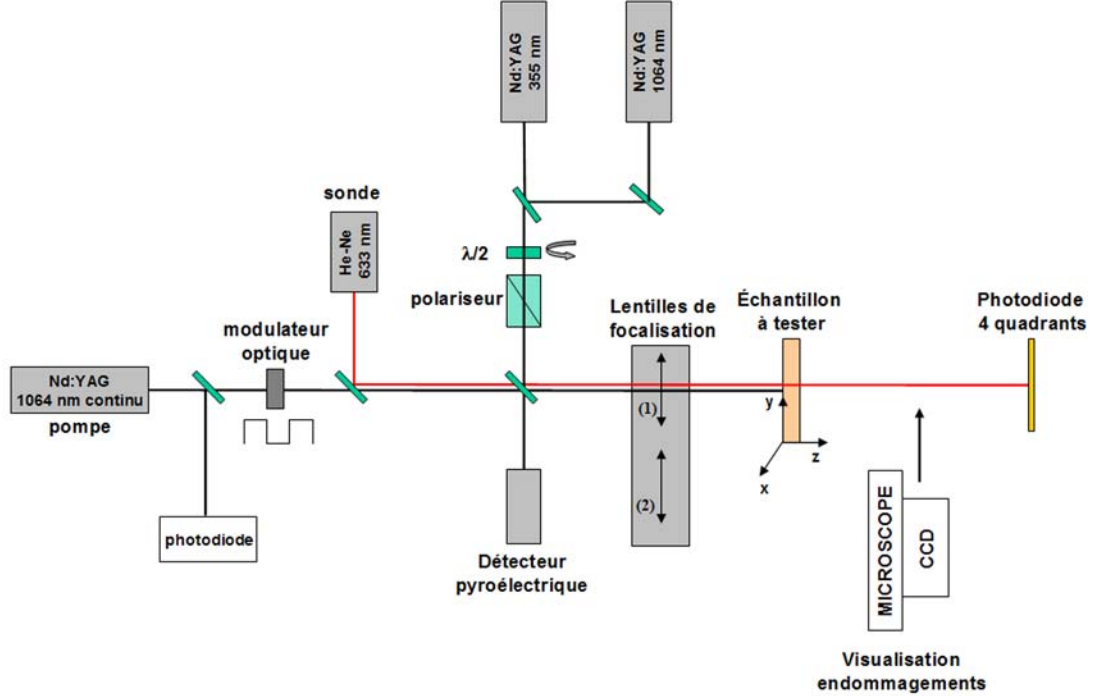


FIG. 4.5 – Microscope photothermique haute résolution couplé à un banc d'endommagement laser

- D'autre part, l'ajout de moteurs piezoélectriques 3D permet maintenant de réaliser des cartographies d'absorption en trois dimensions avec une résolution spatiale accrue. Nous reviendrons sur ce point au paragraphe suivant dans le cadre de la validation expérimentale de la détectivité du dispositif.

Le microscope photothermique a également été couplé à un banc d'endommagement laser afin d'étudier de façon in-situ et à la même longueur d'onde les corrélations entre les défauts absorbants du matériau et sa tenue au flux laser. Pour cela, un banc de mesure de tenue au flux laser comparable à celui décrit au chapitre 2 a été installé. Deux lasers Nd:YAG pulsés ( $\tau = 7$  ns) permettent d'irradier le matériau à 1064 nm et 355 nm. Grâce à différents objectifs de focalisation, il est possible d'obtenir des tailles de spot allant de  $8 \mu\text{m}$  à  $50 \mu\text{m}$ . Une mesure d'énergie prenant en compte le profil réel du faisceau est également disponible.

Le couplage in-situ d'un dispositif de détection des défauts absorbants nanométriques présents dans les composants optiques avec un banc d'endommagement laser permet d'étudier le comportement de ces centres précurseurs avant et après irradiation à différentes fluences et ceci avec un positionnement précis.

### 4.2.3 Application à la detection de particules absorbantes isolées de taille nanométrique

#### Validation expérimentale de la résolution en profondeur

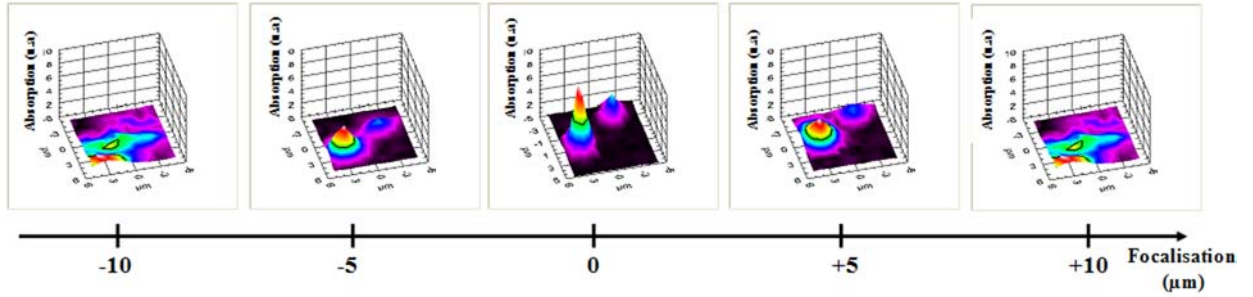


FIG. 4.6 – Evolution du signal photothermique obtenu sur une bille d'or enterrée de 200 nm de diamètre en fonction du point de focalisation des faisceaux pompe et sonde

Différentes cartographies photothermiques d'une bille d'or de 200 nm artificiellement implantée dans une couche de silice ont été réalisées. Chaque mesure est effectuée de telle sorte que le plan de focalisation des faisceaux pompe et sonde se déplace en profondeur dans le matériau. La figure 4.6 illustre l'ensemble des résultats obtenus.

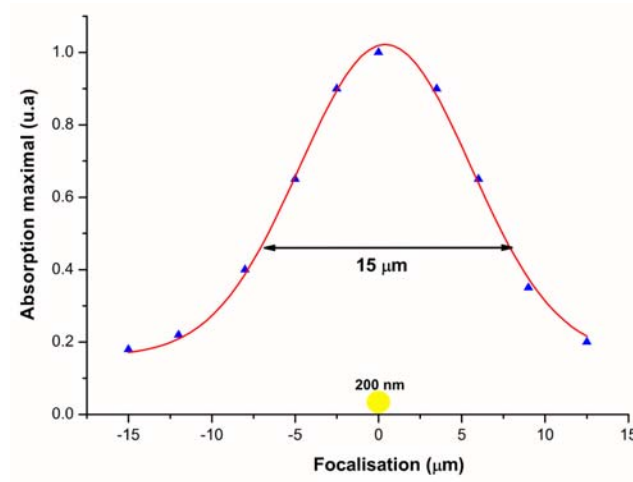


FIG. 4.7 – Evolution du signal photothermique maximal en fonction du point de focalisation du faisceau pompe

La figure 4.7 représente la valeur maximale du signal photothermique mesuré

## 4.2. DÉTECTION EXPÉRIMENTALE DES DÉFAUTS RESPONSABLES DE L'ENDOMMAGEMENT LASER

sur chacune des cartographies en fonction du plan de focalisation (le plan donnant le signal maximum est pris comme origine). Ces résultats montrent que le signal photothermique relatif à une inhomogénéité d'absorption nanométrique ( $\phi = 200$  nm) reste significatif dans une région de  $15\text{ }\mu\text{m}$  autour de ce défaut. Cette valeur correspond donc approximativement à la résolution en  $z$  du microscope photothermique présenté ici. Notons néanmoins que cette valeur dépend, elle aussi, de l'absorption du défaut que l'on cherche à caractériser. Dans le cas de défauts plus petits ou faiblement absorbants, la zone dans laquelle le signal photothermique est significatif par rapport au bruit de mesure, se réduit fortement.

### Validation expérimentale de la résolution latérale

La figure 4.8 est un exemple de cartographies photothermiques obtenues sur deux défauts modèles (inclusions d'or artificiellement déposées entre deux couches de silice). Ce résultat valide donc la possibilité de détecter de façon automatique des défauts absorbants d'une centaine de nanomètres (respectivement 250 et 100 nm).

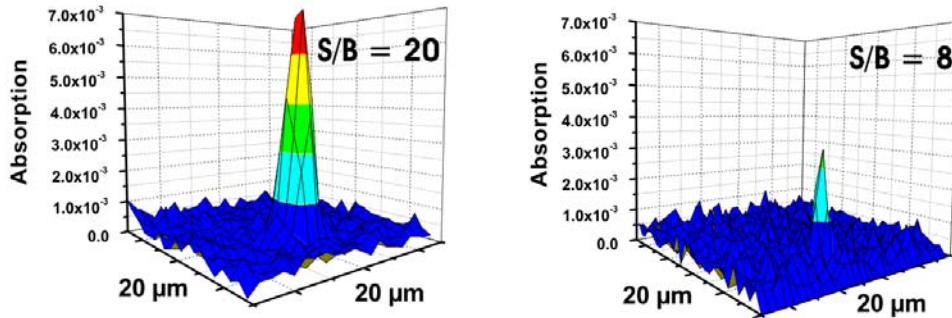


FIG. 4.8 – *Cartographies d'absorption obtenues sur deux défauts modèles (billes d'or artificiellement implantées entre deux couches de silice) de 250 nm et 100 nm*

Théoriquement le dispositif expérimental permet d'observer des défauts absorbants dont la dimension est de l'ordre de 20 nanomètres. Or expérimentalement, plusieurs problèmes de détectivité existent rendant cette résolution difficilement accessible:

- Tout d'abord, le fait d'étudier des défauts absorbants de très petites dimensions implique nécessairement de travailler à partir de signaux photothermiques très faibles. Pour illustration, la figure 4.9 représente la quantité d'énergie absorbée par une sphère métallique soumise à une irradiation laser comparable à celle de notre faisceau pompe en fonction de sa taille. Le calcul présenté ici est obtenu à l'aide de la théorie de Mie pour une sphère

d'or ( $n=0.281$ ,  $k=7.243$ ) irradiée à 1064 nm avec un faisceau top-hat de 800nm (équivalent en énergie à un faisceau gaussien de  $1\mu\text{m}$  à  $1/e^2$ ).

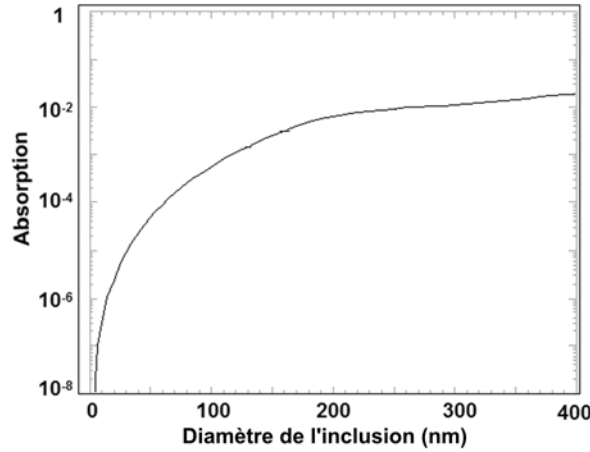


FIG. 4.9 – Evolution de l'énergie absorbée par une inclusion d'or en fonction de sa taille (faisceau incident top-hat de 800 nm,  $\lambda = 1064$  nm)

Nous voyons très bien à partir de ce résultat théorique que l'absorption décroît fortement avec la taille de l'inclusion à détecter. Expérimentalement, cette décroissance du signal photothermique avec la taille de la particule est clairement mise en évidence figure 4.8. En effet dans le cas de l'inclusion d'or de 100 nm, le rapport signal sur bruit n'est plus que de 8 contre 20 dans le cas de la bille de 250 nm. Ce problème devient encore plus pénalisant pour les défauts de plus petites tailles ( $<$  quelques dizaines de nm).

- De plus, dans le cas d'un défaut absorbant de quelques dizaines de nanomètres de diamètre, la focalisation des faisceaux pompe et sonde devient elle-aussi une étape critique dans le processus de détection. En effet, le moindre écart entre les faisceaux et le défaut absorbant induit une forte décroissance du signal photothermique et par conséquent réduit la possibilité de détection. Pour augmenter les chances de détection de ces défauts absorbants nanométriques, une investigation résolue et systématique suivant la profondeur de l'échantillon doit donc être réalisée.

La prise en compte de ces problèmes expérimentaux dans le but de détecter des particules absorbantes de taille nanométrique, impose donc de réaliser des "cartographies photothermiques haute-résolution 3D" dont les conditions expérimentales sont données dans le tableau 4.1.

La figure 4.10 est une illustration de ces cartographies d'absorption successives obtenues sur un échantillon contenant des défauts modèles (inclusions d'or de différentes tailles).

#### 4.2. DÉTECTION EXPÉRIMENTALE DES DÉFAUTS RESPONSABLES DE L'ENDOMMAGEMENT LASER

Diamètre faisceau pompe	1 $\mu\text{m}$
Pas de scan suivant X,Y	$\Delta X = \Delta Y = 10 \text{ nm}$
Zone cartographiée	30 $\mu\text{m}$ x 30 $\mu\text{m}$
Pas de scan suivant Z	$\Delta Z = 5 \mu\text{m}$

TAB. 4.1 – Exemple de conditions expérimentales nécessaires à une cartographie photothermique haute-résolution 3D

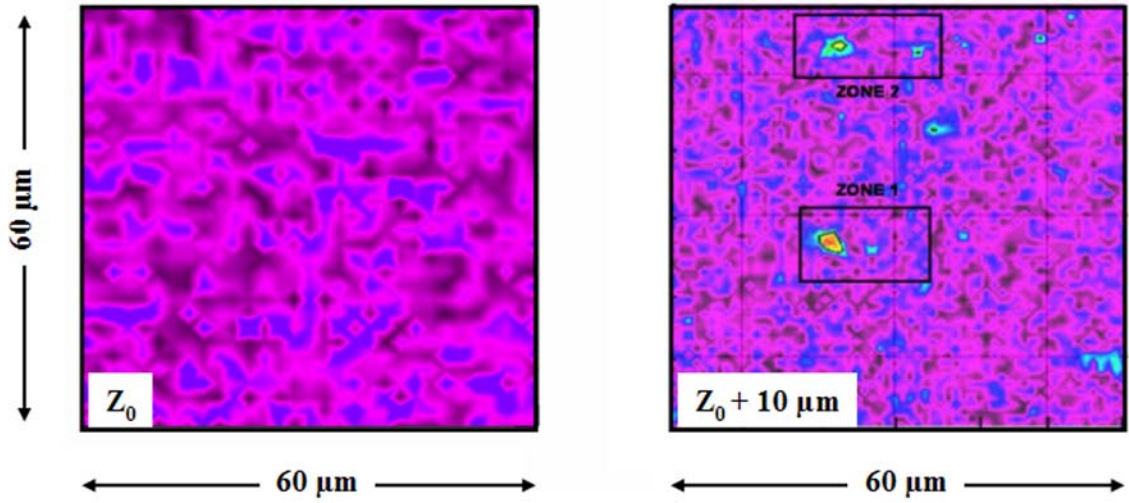


FIG. 4.10 – Cartographies photothermiques obtenus en différents plans d'un échantillon de silice contenant des billes d'or calibrées

- L'étude en Z permet d'effectuer une recherche automatique du plan dans lequel se situe le défaut et permet de ce fait de maximiser le signal photothermique. Expérimentalement, nous voyons très bien qu'un simple écart de focalisation de 10  $\mu\text{m}$  ne permet plus d'observer ces défauts.
- La cartographie haute résolution réalisée dans le "meilleur plan" permet de mettre en évidence deux défauts absorbants. Une mesure *a posteriori* de la surface de l'échantillon par microscopie à force atomique, permet d'associer à chaque défaut sa taille réelle. Ici, les inclusions d'or détectées sont respectivement de 100 nm (zone 1) et 50 nm (zone 2).

Cet exemple montre qu'il est maintenant possible de détecter automatiquement les défauts absorbants de quelques dizaines de nanomètres présents dans les composants optiques à l'aide du microscope photothermique en réalisant des "cartographies haute-résolution 3D". Néanmoins, la réalisation de telles détections reste pour l'instant très coûteuse en terme de temps d'expérience. En effet, une cartographie haute résolution telle que celle présentée figure 4.10 nécessite

plusieurs heures.

Nous montrons en particulier ici qu'il est possible de détecter automatiquement des particules métalliques de 50nm. Ce résultat valide donc la résolution latérale théorique calculée précédemment. Cependant, ceci ne permet pas encore de déceler les défauts réels ( $\sim 10$  nm) présents dans les verres de silice Suprasil et responsables de l'endommagement laser [34]. Un effort doit donc encore être fait afin d'améliorer la résolution du microscopique photothermique haute-résolution. Pour cela deux pistes sont d'ores et déjà envisagées:

- D'une part, il serait intéressant de travailler à l'amélioration du rapport signal sur bruit du dispositif. En effet, la diminution du bruit de mesure permettrait de détecter des inhomogénéités d'absorption inférieures à  $10^{-5}$  (limite actuelle). Ceci peut passer par une augmentation de la fréquence de modulation du faisceau pompe (modulateur acousto-optique).
- D'autre part la détectivité peut également être améliorée en changeant simplement la longueur d'onde du faisceau pompe. Ainsi l'utilisation d'un faisceau pompe UV à la place d'un faisceau IR permettrait d'augmenter de façon significative la quantité d'énergie absorbée par les défauts métalliques au cours de l'irradiation. De plus, l'utilisation d'un laser pompe de plus petite longueur d'onde permettrait aussi de diminuer la taille du faisceau au niveau de l'échantillon et par conséquent d'augmenter la résolution latérale du dispositif. Notons que ce changement de longueur d'onde présente également un fort intérêt scientifique puisqu'actuellement la majorité des problèmes d'endommagement viennent des composants optiques utilisés dans le domaine UV (355 nm).

### 4.3 Conclusion

La détection non destructive des défauts absorbants responsables de l'endommagement laser dans les composants optiques a été étudiée ici. L'état de l'art montre que les méthodes photothermiques constituent un moyen performant de caractérisation de l'absorption optique dans les matériaux.

Les méthodes destructives d'endommagement laser montrent (chapitre 3) que les centres précurseurs de l'endommagement laser sont en densités très faibles aussi bien dans les substrats que dans les empilements de couches minces (environ 1 défaut pour  $100 \mu m^2$ ). Dans ces conditions, la détection de ces particules absorbantes devient un problème de détection de particules uniques.

Nous avons donc amélioré le dispositif de microscopie photothermique de l'Institut Fresnel afin de lui conférer une haute résolution spatiale et une détectivité accrue. Dans le cas d'un faisceau pompe de rayon  $1 \mu m$  à  $1/e^2$ , l'étude théorique du pouvoir de résolution montre qu'il est possible de détecter des particules absorbantes isolées de 20 nm grâce à un pas d'échantillonnage équivalent.

Dans ces conditions, la mise en place de moteurs piezoélectriques pour la réalisation des cartographies d'absorption a permis de détecter expérimentalement des inclusions d'or de 50 nm de diamètre artificiellement enterrées entre deux couches de silice. Ce résultat montre que nous avons quasiment atteint la limite théorique de résolution du dispositif dans sa configuration actuelle. L'amélioration de la détectivité afin de voir les défauts absorbants dans les matériaux ultra-purs doit donc maintenant passer par un changement de longueur d'onde vers l'UV.

La configuration colinéaire associée à un moteur piezoélectrique dans la direction de propagation des faisceaux permet de plus la réalisation automatique de cartographies d'absorption en trois dimensions.

Finalement, le couplage du microscope photothermique à un banc d'endommagement laser va nous permettre maintenant de réaliser des corrélations in-situ entre l'absorption des défauts nanométriques présents dans les matériaux optiques et la tenue aux flux de ces derniers.



## Chapitre 5

# Etude des mécanismes initiateurs de l'endommagement laser

Nous étudions dans ce chapitre les mécanismes d'initiation de l'endommagement laser au niveau des défauts absorbants présents dans les matériaux optiques. Les moyens de caractérisation actuels ne permettant pas de détecter de façon non destructive les centres précurseurs réels, nous travaillons ici sur des inclusions d'or modèles. L'irradiation de ces défauts couplée à une détection par microscopie photothermique haute résolution permet de suivre leur évolution ainsi que celle du matériau hôte en fonction de la densité d'énergie appliquée. La comparaison des résultats expérimentaux avec des simulations d'interaction laser-matière permet de remonter aux phénomènes physiques associés.

## 5.1 Introduction

L'étude de l'endommagement laser des matériaux optiques à partir de défauts modèles fait, depuis quelques années, l'objet de nombreuses études aussi bien expérimentales que théoriques. Nous pouvons en particulier citer les travaux précurseurs de S. Papernov à l'Université de Rochester (USA), ceux de M. Feit et A. Rubenchik au LLNL (USA) ou encore les travaux menés en France dans le cadre du projet "Megajoule".

S. Papernov est le premier à avoir utilisé des inclusions métalliques nanométriques pour simuler la présence de défauts absorbants dans les composants optiques [70]. Les échantillons "modèles" utilisés sont composés de deux couches de silice obtenues par évaporation classique entre lesquelles sont déposées des inclusions d'or dont la taille peut varier de 3 à 20 nm [93]. La détection des endommagements laser de surface est réalisée par microscopie à force atomique.

Plusieurs points importants ressortent de ces différentes études:

- Les défauts "modèles" jouent le rôle de centres précurseurs de l'endommagement laser pour les composants considérés. En effet, les cratères détectables en surface sont localisés au niveau des inclusions métalliques [94]. De plus, ces endommagements apparaissent pour des fluences bien inférieures au seuil de claquage de la silice en couche mince.
- La morphologie des cratères ainsi créés dépend fortement de la localisation du défaut [95]. En particulier, une étude paramétrique sur la profondeur d'enfouissement montre que plus la particule est enfouie profondément, plus l'énergie nécessaire à l'apparition d'un cratère est importante.
- L'utilisation d'un microscope à force atomique permet également de mettre en évidence dans le mécanisme une étape qui précède la rupture du matériau en surface [94]. En effet, pour des fluences inférieures au seuil de claquage, un gonflement important de la couche apparaît au niveau de l'inclusion.
- L'étude de l'absorption du matériau avant et après tir montre également que dans le cas d'inclusions de 3nm enfouies dans une couche de silice, l'irradiation laser du composant entraîne une augmentation significative de son absorption globale [94].

L'utilisation de défauts modèles pour étudier les mécanismes de l'endommagement laser a été motivée par la possibilité de simuler facilement l'interaction laser matière entre le rayonnement incident et la sphère métallique représentant le défaut absorbant.

La Direction des Applications Militaires du CEA développe depuis plusieurs années des codes numériques décrivant l'interaction laser matière. Le code DEL-

POR, par exemple, permet de calculer les propriétés thermo-mécaniques de différents matériaux au cours d'une irradiation laser. Ainsi la simulation précise de l'évolution du défaut (bille d'or) et du matériau hôte (silice) permet de remonter aux mécanismes initiateurs de l'endommagement. Dans ce contexte, une étude initiée par le CEA/DAM au sein du "Groupe de Travail sur l'Endommagement laser", fédère les travaux de différents laboratoires universitaires afin d'observer puis simuler les différentes étapes du claquage:

- Le comportement des défauts absorbants sous irradiation laser est étudié expérimentalement grâce à différents moyens de diagnostic (microscope à force atomique, microscope photothermique, ...) puis comparé aux simulations [51, 53, 96–98]. Ces travaux font l'objet d'une description détaillée dans les paragraphes suivants.
- Des études physico-chimiques ont également été menées sur ces défauts modèles afin de préciser qualitativement l'évolution des défauts sous irradiation laser. En particulier nous pouvons citer les travaux de Spectroscopie de Photons X (XPS) montrant que la diffusion de l'or dans la matrice de silice au cours de l'irradiation est accompagnée d'une formation de siliciures [99, 100]. La structure métallique de ce type de composés confère localement à l'échantillon de silice une forte absorption optique. Notons ici que ce résultat est en accord avec les fortes absorptions mesurées expérimentalement sur la matrice de silice hôte après irradiation [53, 94].
- D'autres études effectuées par Grua et al. [101–104] montrent que cette augmentation de l'absorption de la silice hôte après irradiation peut être aussi vue d'un point de vue électronique comme une injection de "porteurs" de charges de l'inclusion métallique vers la bande de conduction de la silice environnante.

## 5.2 Contexte de l'étude

Dans l'hypothèse d'une interaction laser-matière basée sur des phénomènes thermiques, l'état de l'art sur l'origine des centres précurseurs de l'endommagement laser (chapitre 3) a mis en évidence différents types de défauts absorbants:

- **Les défauts "extrinsèques":** De taille micrométrique (500 nm → quelques dizaines de microns), ils sont facilement détectables à l'aide de techniques optiques classiques telles que la diffusion ou la microscopie en mode "Nomarski". Il s'agit principalement de nodules qui apparaissent dans les empilements diélectriques ainsi que de contaminants de surface provenant de

l'environnement direct du laser.

- **Les défauts "intrinsèques":** De taille sub-micronique ( $\leq 500$  nm), ces défauts sont très difficilement détectables à l'aide de techniques classiques. Ils apparaissent en volume lors de la fabrication des composants ou se déposent en surface lors du polissage.

Nous réalisons ici une étude des mécanismes de l'endommagement laser sur des défauts modèles représentatifs de l'ensemble des centres précurseurs absorbants. Dans le cas des défauts volumiques (paragraphe 5.3), des inclusions d'or de différentes tailles (600 nm  $\rightarrow$  3 nm) permettent de simuler aussi bien les défauts extrinsèques que les défauts intrinsèques.

### 5.3 Etude des mécanismes de l'endommagement laser à l'aide de défauts modèles: Cas d'inclusions métalliques

L'étude présentée ici s'inscrit donc dans le cadre général d'une collaboration avec trois centres du CEA/DAM (CESTA, Île de France, Le Ripault) dans le but de valider les hypothèses de la modélisation des mécanismes fondamentaux de l'endommagement laser. Afin de disposer d'un matériau parfaitement identifié, des échantillons modèles ont été fabriqués pour l'étude. Ils sont constitués d'inclusions d'or de taille sub-micronique déposées entre deux couches de silice. Ce type de défaut étant absorbant, le microscope photothermique présenté au chapitre 4 est un outil particulièrement bien adapté à leur détection non-destructive. Par ailleurs, la compréhension des mécanismes d'endommagement liés à ces défauts pourra être entreprise grâce à l'étude de l'évolution de ces billes d'or en fonction de l'irradiation laser. En effet, rappelons que le microscope photothermique couplé au banc d'endommagement laser permet de mesurer in-situ l'évolution de l'absorption d'un défaut avant et après tir.

Les travaux présentés ici se déroulent en plusieurs étapes:

**Étape 1:** Caractérisation précise (taille et densité) des défauts modèles par microscopie optique et à force atomique.

**Étape 2:** Mesure du seuil d'endommagement laser induit par la présence de ces défauts modèles.

**Étape 3:** Irradiation des défauts modèles à des fluences inférieures au seuil d'endommagement ainsi mesuré.

**Étape 4:** Détection in-situ des modifications pouvant apparaître au niveau du défaut et dans le matériau hôte. Pour cela, trois moyens de détection sont

utilisés: microscopie optique, microscopie à force atomique et surtout microscopie photothermique haute résolution.

**Étape 5:** Simulation des propriétés thermo-mécaniques de l'inclusion métallique et du matériau hôte au cours de l'irradiation.

**Étape 6:** Comparaison des résultats expérimentaux et théoriques en vue d'une mise en évidence des mécanismes physiques responsables de l'endommagement laser du matériau.

### 5.3.1 Description des "échantillons modèles"

#### Procédés de fabrication

Les différences principales entre les échantillons modèles résident dans la taille des inclusions d'or déposées et dans la technique de réalisation. Ils se répartissent suivant deux catégories:

1. **Échantillons avec inclusions d'or de 100 à 600 nm fabriqués par le CEA/LETI (Grenoble)**

Les inclusions d'or sont insérées entre deux couches de silice déposées par évaporation classique sur un substrat de silice superpoli. Un schéma descriptif de ces échantillons est représenté figure 5.1.

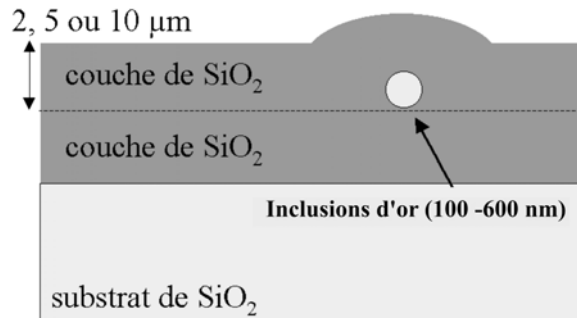


FIG. 5.1 – Schéma de principe des échantillons LETI

La densité de billes déposées ainsi que l'épaisseur de la couche superficielle dépendent du procédé de fabrication utilisé. Dans notre cas, une première couche de silice est déposée par évaporation classique. Les billes d'or en suspension dans une solution sont alors déposées par "spin-coating". Enfin une seconde couche de silice est déposée de manière à recouvrir les billes d'or. L'optimisation du procédé de dépôt permet d'éviter la coalescence des inclusions sans avoir recours à des colloïdes. Ceci est d'autant plus important que S. Papernov a montré que les résidus de ces surfactants pouvaient

### 5.3. ETUDE DES MÉCANISMES DE L'ENDOMMAGEMENT LASER À L'AIDE DE DÉFAUTS MODÈLES: CAS D'INCLUSIONS MÉTALLIQUES

---

polluer les particules d'or et ainsi nuire à la compréhension des résultats expérimentaux [93]. Nous devons cependant garder à l'esprit que l'utilisation de couches minces de silice, nécessaires à l'enfouissement des billes d'or, s'éloigne sensiblement des propriétés du verre massif surtout au niveau de la porosité moyenne.

#### 2. Échantillons avec inclusions d'or de 3 nm fabriqués par le LASIM (Laboratoire de Spectroscopie Ionique et Moléculaire - Lyon)

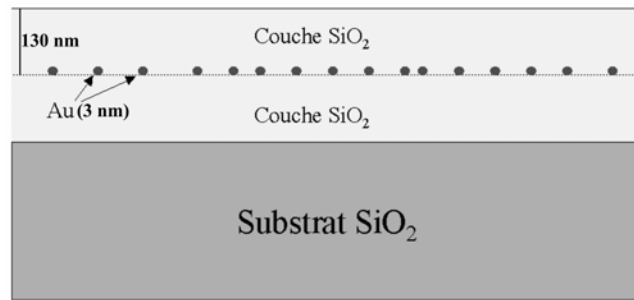


FIG. 5.2 – Schéma de principe des échantillons LASIM

Les échantillons présentés ici contiennent des inclusions d'or de diamètre de l'ordre de 3 nm enfouies sous une couche de silice (130 nm et 30 nm). Les couches de silice sont elles aussi déposées par des techniques d'évaporation classiques. Les particules d'or sont fabriquées in-situ par une technique de dépôt assistée par laser. Des échantillons avec différentes densités (1 à 100 inclusions par  $(\mu\text{m})^2$ ) ont ainsi été réalisés pour l'étude.

#### Caractérisation des défauts modèles

Avant d'effectuer des mesures d'absorption et d'endommagement sur ces défauts modèles, une caractérisation des échantillons est réalisée précisément afin de déterminer la taille et la densité des inclusions étudiées. Pour cela, la microscopie optique (Fond noir, Nomarski) et la microscopie à force atomique sont les deux principales techniques utilisées.

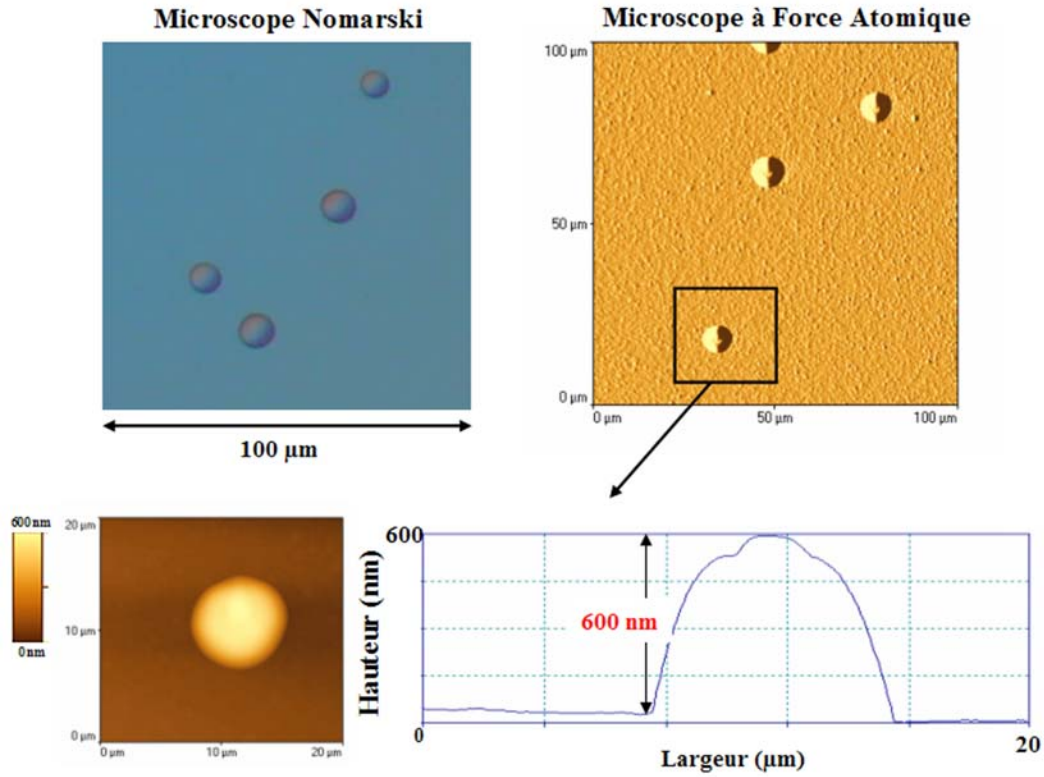


FIG. 5.3 – Caractérisation par microscopie optique et à Force Atomique des défauts modèles (cas d'une bille de 600 nm)

L'image Nomarski présentée figure 5.3 montre qu'en focalisant le microscope sur la surface de l'échantillon, il est possible de visualiser un dôme de silice qui est une réplique de la bille d'or enfouie. Dans le cas où le diamètre de l'inclusion est petit devant l'épaisseur de la couche, la hauteur du dôme est égale au diamètre de la bille étudiée [61]. La figure 5.3 est un exemple de caractérisation effectuée sur une bille de 600 nm. Pour ces tailles d'inclusions, la focalisation du microscope optique à l'interface entre les deux couches de silice permet également d'obtenir une image de la bille d'or (figure 5.4). Ceci est rendu possible par le mode "Nomarski" du microscope optique utilisé ici. En effet, ce mode d'imagerie par contraste interférentiel est très sensible aux variations d'épaisseur optique du matériau donc en particulier aux variations d'indice. Ainsi, l'écart important d'indice de réfraction entre l'or et la silice rend la bille facilement détectable. Néanmoins notons que ce type de caractérisation devient critique, voire impossible lorsque la taille des billes devient inférieure à la limite de résolution du microscope.

### 5.3. ETUDE DES MÉCANISMES DE L'ENDOMMAGEMENT LASER À L'AIDE DE DÉFAUTS MODÈLES: CAS D'INCLUSIONS MÉTALLIQUES

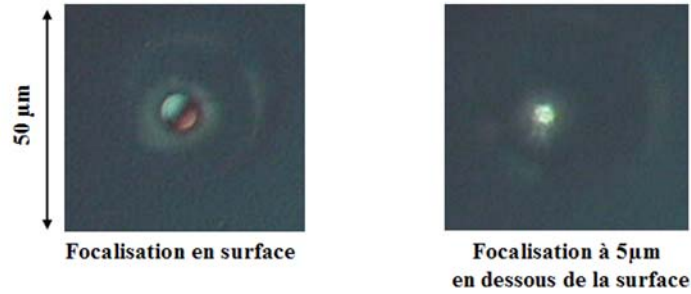


FIG. 5.4 – Visualisation au microscope Nomarski du dôme de silice en surface et de la bille d'or (600 nm) située à l'interface

La répartition en taille et en densité des défauts présents dans les différents échantillons est obtenue en réalisant une étude statistique sur un grand nombre de billes.

En ce qui concerne les inclusions de 3 nm présentes dans les échantillons LASIM, l'étude de taille et de distribution est impossible. En effet, la rugosité de surface de la couche de silice est de l'ordre de grandeur de la taille des billes. Dans ces conditions, même les mesures par microscopie à force atomique (figure 5.5) ne permettent pas de les mettre en évidence.

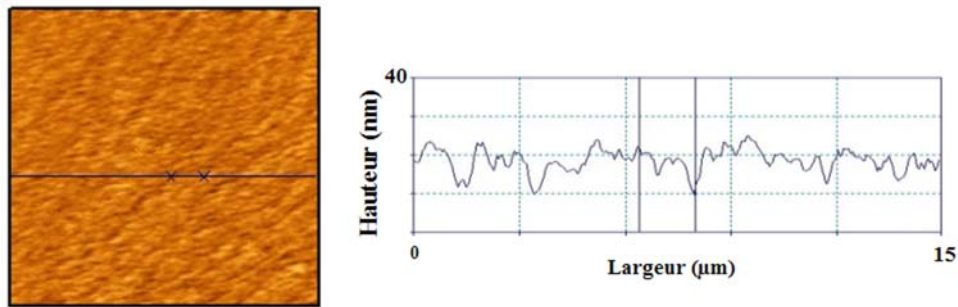


FIG. 5.5 – Image AFM et profil de la surface d'un échantillon LASIM

#### 5.3.2 Description du code d'interaction laser-matière DELPOR

##### Introduction et Principe général

Le code d'interaction laser-matière DELPOR développé par le CEA/DAM permet de calculer durant une impulsion laser nanoseconde l'énergie déposée dans un matériau. Dans le cas d'une inclusion métallique insérée dans un verre de silice,



il est alors possible de suivre l'élévation de pression et de température au niveau de ce défaut et dans l'environnement proche au cours du temps en fonction de la fluence d'irradiation.

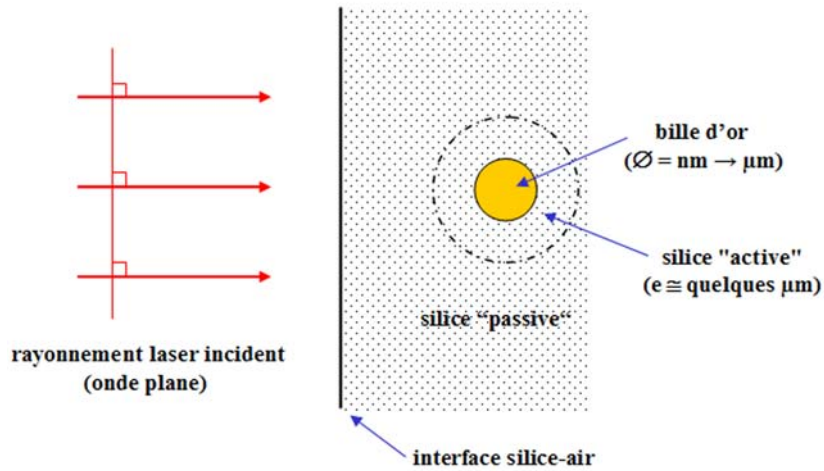


FIG. 5.6 – *Principe du calcul d'interaction laser matière dans le cas d'une inclusion d'or insérée dans un verre de silice*

La figure 5.6 illustre le principe utilisé pour le calcul de l'interaction laser-matière dans le cas d'une inclusion nanométrique insérée dans un verre de silice. Différents points sont à noter:

- Le rayonnement laser incident est assimilé à une onde plane dont la fréquence correspond à la longueur d'onde d'irradiation.
- Le matériau étudié est divisé en trois régions. Tout d'abord l'inclusion sphérique (métal ou diélectrique) définie par son rayon. Suit alors une couche de silice "active" de quelques microns d'épaisseur entourant l'inclusion et dont les caractéristiques physiques (conductivité thermique et absorption optique) sont susceptibles d'évoluer avec le dépôt d'énergie. Puis, plus loin on retrouve une silice "passive" transparente dont les propriétés optiques ne sont jamais modifiées par l'impulsion laser.
- Les défauts d'interface pouvant apparaître entre l'or et la silice sont également pris en compte dans la définition de la couche "active". Ainsi un mauvais contact thermique entre l'or et la silice peut être simulé par une couche "active" dont les paramètres de conduction thermique sont volontairement faibles par rapport aux données réelles.

### 5.3. ETUDE DES MÉCANISMES DE L'ENDOMMAGEMENT LASER À L'AIDE DE DÉFAUTS MODÈLES: CAS D'INCLUSIONS MÉTALLIQUES

#### Description du modèle utilisé

Un schéma synthétique des différentes étapes nécessaires à la simulation de l'interaction laser-matière pour un maillage spatial donné est représenté figure 5.7.

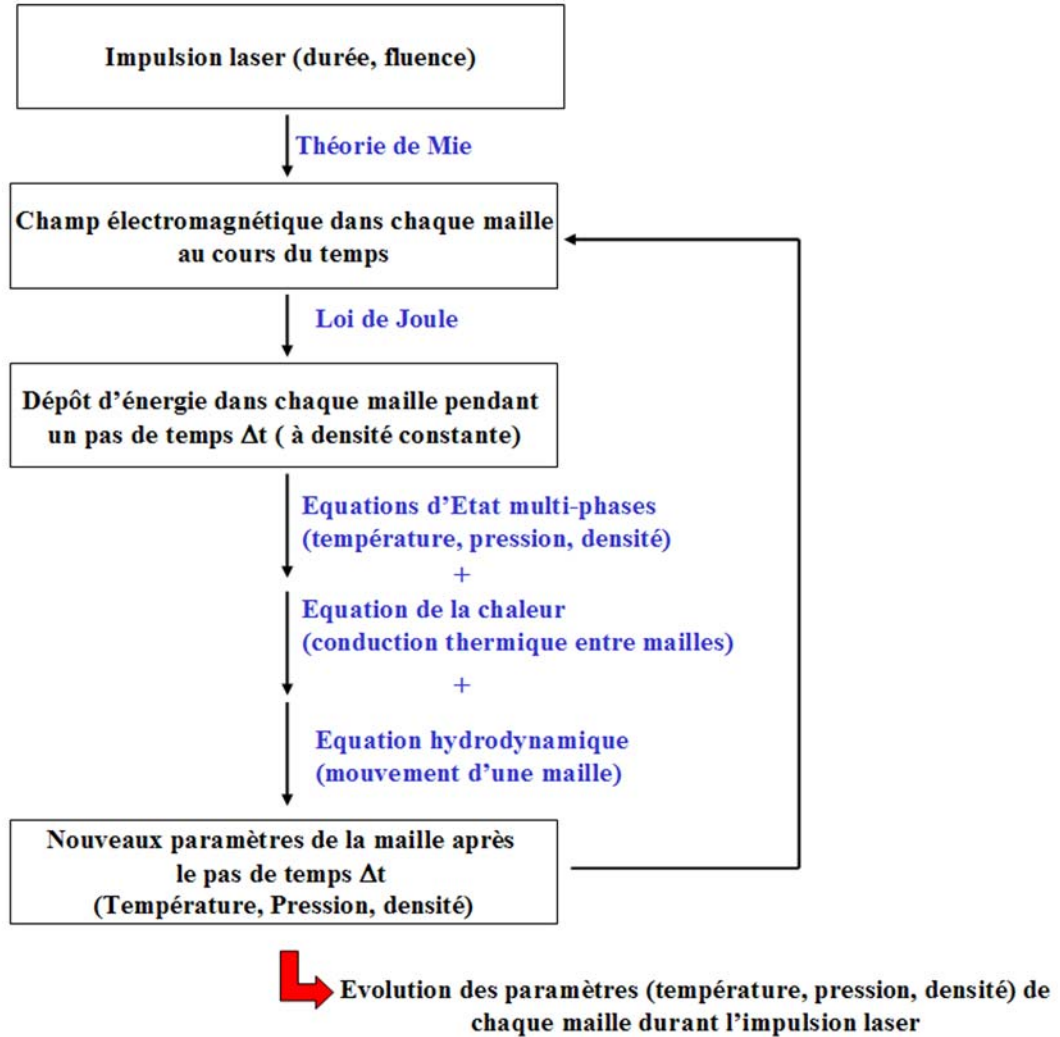


FIG. 5.7 – Principe du modèle physique d'interaction laser-matière utilisé dans DELPOR

Notons que DELPOR est un code numérique Lagrangien mono-dimensionnel. Il permet donc de calculer le dépôt d'énergie dans un matériau radialement inhomogène au moyen de la théorie de Mie généralisée. Le matériau étudié (dans notre cas, une bille d'or) doit donc être découpé selon un maillage sphérique comme le montre la figure 5.8.

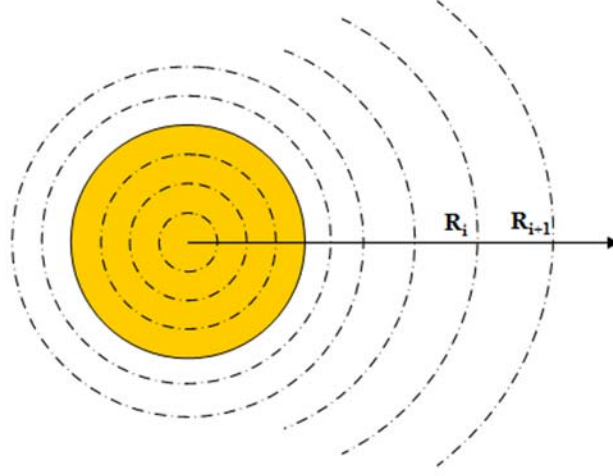


FIG. 5.8 – Maillage utilisé pour le calcul du dépôt d'énergie

Nous allons donc maintenant décrire les différentes étapes de la réalisation du calcul ainsi que les différents résultats associés:

**(1) Calcul du champ électromagnétique dans le matériau au cours du temps:**

Le problème consiste à résoudre les équations de Maxwell dans un milieu à symétrie radiale irradié par une onde plane se propageant dans un diélectrique sans perte (silice passive). Le milieu central, à symétrie sphérique, peut être une inclusion métallique ou diélectrique. Dans notre cas, la prise en compte d'une couche de silice "active" autour de la bille d'or donne un caractère stratifié au milieu.

Les champs électriques et magnétiques dans ces différents milieux vérifient les équations de Maxwell:

$$\begin{cases} \operatorname{div} \vec{E} = \rho / \epsilon_0 & \operatorname{div} \vec{B} = 0 \\ \operatorname{rot} \vec{E} = -\frac{\partial \vec{B}}{\partial t} & \operatorname{rot} \vec{B} = \mu_0 \vec{j} + \frac{\epsilon}{c^2} \frac{\partial \vec{E}}{\partial t} \end{cases} \quad (5.1)$$

En faisant l'hypothèse de variation lente des champs par rapport à la pulsation  $\omega_0$  du laser, le champ électrique peut donc se développer sous forme d'harmoniques:

$$\vec{E}(\vec{r}, t) = \vec{E}_1(\vec{r}) \sin(\omega_0 t) + \vec{E}_2(\vec{r}) \cos(\omega_0 t) \quad (5.2)$$

### 5.3. ETUDE DES MÉCANISMES DE L'ENDOMMAGEMENT LASER À L'AIDE DE DÉFAUTS MODÈLES: CAS D'INCLUSIONS MÉTALLIQUES

---

Les équations Maxwell conduisent alors à l'équation d'Helmholtz:

$$\begin{cases} \left[ \Delta - \overrightarrow{grad}(div) \right] \vec{E}_1(\vec{r}) + k_0^2 \left[ \varepsilon_1(\vec{r}) \vec{E}_1(\vec{r}) + \varepsilon_2(\vec{r}) \vec{E}_2(\vec{r}) \right] = 0 \\ \left[ \Delta - \overrightarrow{grad}(div) \right] \vec{E}_2(\vec{r}) + k_0^2 \left[ \varepsilon_1(\vec{r}) \vec{E}_2(\vec{r}) - \varepsilon_2(\vec{r}) \vec{E}_1(\vec{r}) \right] = 0 \end{cases} \quad (5.3)$$

où  $k_0$  est le vecteur d'onde dans le vide du faisceau laser incident et  $\varepsilon_1(\vec{r})$ ,  $\varepsilon_2(\vec{r})$  respectivement les parties réelle et imaginaire de la permittivité du milieu considéré.

Étant donné que la répartition du champ électromagnétique est calculée pour chaque pas de temps ( $\Delta t$ ), l'expression de la permittivité dépend donc de l'état de la matière à la fin de l'itération précédente:

Pour des milieux dans l'état solide ou liquide, ils sont liés aux parties réelle ( $n(\vec{r})$ ) et imaginaire ( $\eta(\vec{r})$ ) de l'indice optique complexe:

$$\begin{cases} \varepsilon_1(\vec{r}) = n(\vec{r})^2 - \eta(\vec{r})^2 \\ \varepsilon_2(\vec{r}) = 2n(\vec{r}) \cdot \eta(\vec{r}) \end{cases} \quad (5.4)$$

Dans le cas d'un plasma, ces grandeurs sont ainsi reliées uniquement à la conductivité complexe du milieu ( $\sigma(\vec{r}) = \sigma_1(\vec{r}) + j\sigma_2(\vec{r})$ ):

$$\begin{cases} \varepsilon_1(\vec{r}) = \varepsilon_r - \frac{\sigma_2(\vec{r})}{\varepsilon_0 \cdot c \cdot k_0} \\ \varepsilon_2(\vec{r}) = \frac{\sigma_1(\vec{r})}{\varepsilon_0 \cdot c \cdot k_0} \end{cases} \quad (5.5)$$

Notons à ce niveau, que la résolution d'un tel problème où l'état physique du matériau peut varier d'une itération à l'autre nécessite de posséder des bases de données importantes sur la conductivité thermique et les indices optiques de ces matériaux (silice et or) en fonction de leur état (solide, liquide ou plasma) et des paramètres thermodynamiques température et pression [105].

La théorie de Mie généralisée [106] permet par la résolution de l'équation d'Helmholtz de calculer à chaque itération temporelle la répartition en trois dimensions du champ électromagnétique à l'intérieur d'une structure à symétrie sphérique irradiée par une onde laser plane. Les figures 5.9 et 5.10 représentent deux exemples de cartographies du module du champ électrique dans le plan de polarisation obtenues sur des billes d'or de 3 nm et 600 nm insérées dans une matrice de silice.

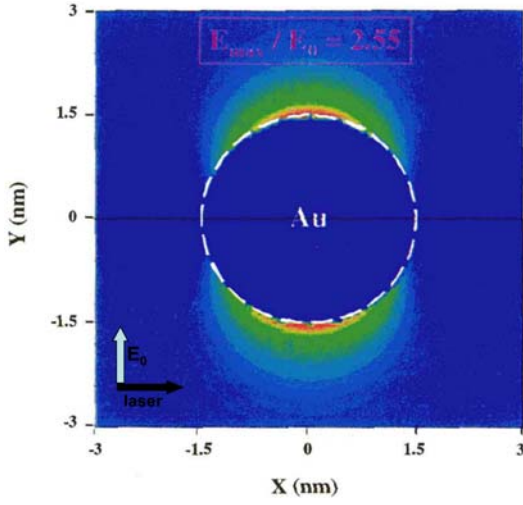


FIG. 5.9 – Cartographie du module du champ électrique autour d'une bille d'or dans le plan de polarisation (3nm,  $\lambda=351$  nm)

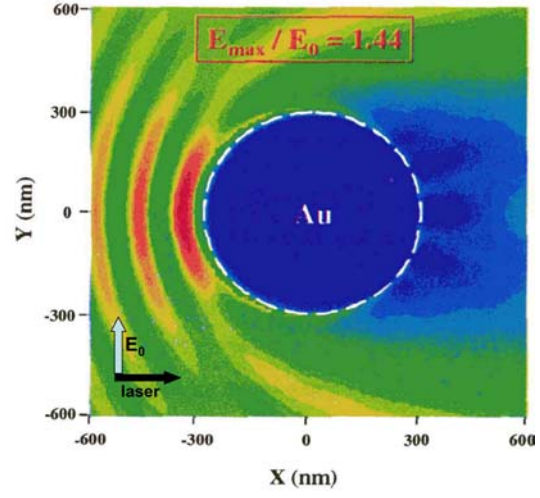


FIG. 5.10 – Cartographie du module du champ électrique autour d'une bille d'or dans le plan de polarisation (600nm,  $\lambda=351$  nm)

## (2) Détermination du dépôt d'énergie en tout point du matériau au cours du temps :

Toute la richesse des résultats obtenus à partir de la théorie de Mie en trois dimensions ne peut malheureusement pas être utilisée. Les figures 5.9 et 5.10 montrent que le champ électrique au voisinage du défaut n'a pas de symétrie radiale. Il en est donc de même pour le dépôt d'énergie par effet Joule qui en découle. La modification des paramètres optiques et thermiques se fait alors de façon anisotrope et détruit la symétrie radiale pour l'itération suivante.

Afin de préserver cette symétrie ainsi que le principe de conservation de l'énergie, le choix est fait de répartir spatialement de manière homogène, dans une couronne donnée du maillage, l'ensemble de l'énergie (intégrée sur les angles  $\theta$  et  $\varphi$ ) que reçoit cette couronne au cours de l'interaction.

D'après la loi de Joule-Lenz, la puissance dissipée par unité de volume dans la sphère métallique est donnée par:

$$\langle P(\vec{r}) \rangle = \langle \vec{j}(\vec{r}) \cdot \vec{E}(\vec{r}) \rangle \quad (5.6)$$

où  $\vec{j}(\vec{r})$  est la densité de courant au point  $\vec{r}$  et  $\vec{E}(\vec{r})$  le champ électromagnétique en ce même point.

Ce qui correspond sur la maille d'indice  $i$  à un dépôt d'énergie durant l'incrément temporel  $\Delta t$  égal à:

### 5.3. ETUDE DES MÉCANISMES DE L'ENDOMMAGEMENT LASER À L'AIDE DE DÉFAUTS MODÈLES: CAS D'INCLUSIONS MÉTALLIQUES

$$E_{deposee} \propto \Delta t \int_{R_i}^{R_{i+1}} \vec{j}(r) \cdot \vec{E}(r) dv \quad (5.7)$$

#### (3) Evolution des paramètres thermodynamiques du matériau au cours du temps:

L'énergie déposée par le laser pendant  $\Delta t$  contribue à la modification des paramètres thermodynamiques (température, pression,...) du matériau étudié.

Le calcul de ces nouveaux paramètres se fait en étudiant de manière séquentielle les différents phénomènes physiques susceptibles d'intervenir (figure 5.7):

##### – Dépôt d'énergie à densité constante:

Dans un premier temps, le dépôt d'énergie peut être interprété comme une augmentation de l'énergie interne du matériau. La connaissance des Equations d'État multi-phases permet de déterminer tous les paramètres thermodynamiques d'un milieu (température, pression, densité, énergie interne, ...) à partir de deux données. En faisant dans un premier temps l'hypothèse d'un dépôt d'énergie à densité de matière constante, on peut donc en déduire les nouvelles valeurs de température et de pression.

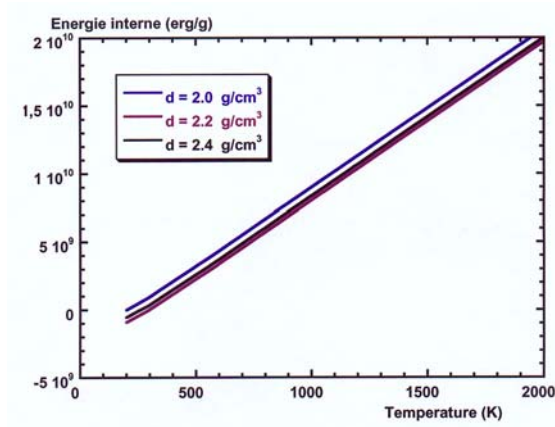


FIG. 5.11 – *Diagramme isochore  $E(T)$  de la silice*

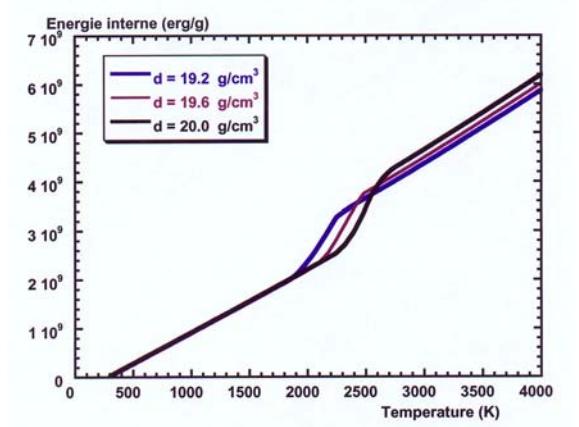


FIG. 5.12 – *Diagramme isochore  $E(T)$  de l'or*

Les figures 5.11 et 5.12 représentent les courbes isochores déterminées grâce aux Equations d'État dans le cas de la silice et de l'or donnant par exemple la température en fonction de l'énergie interne. Notons que là aussi la

connaissance des Equations d'État relatives aux différentes phases du matériau est nécessaire afin de caractériser totalement l'évolution du défaut métallique au cours d'une impulsion laser intense.

– **Diffusion thermique dans le matériau environnant:**

L'inhomogénéité de l'énergie déposée d'une maille à l'autre (cf. cartographies du champ électromagnétique) engendre nécessairement des gradients de température. Ceci conduit donc à prendre en compte dans un second temps la diffusion thermique inter-maillages.

Pour cela, il faut résoudre pour l'ensemble des mailles l'équation de diffusion de la chaleur :

$$\Delta(T(r,t)) = \frac{\rho(r)c(r)}{\kappa(r)} \frac{\partial T(r,t)}{\partial t} \quad (5.8)$$

où  $\kappa(r)$  et  $c(r)$  représentent respectivement la conductivité thermique et la capacité calorifique du matériau en  $r$  dans les conditions thermodynamiques de l'itération en cours.

– **Mouvement mécanique de la maille élémentaire:**

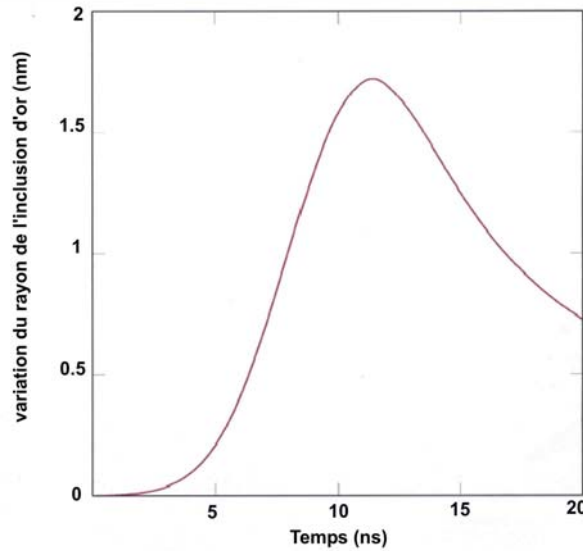


FIG. 5.13 – Variation du rayon d'une bille de 250 nm de diamètre insérée dans une matrice de silice au cours d'une irradiation (profil gaussien de durée à mi-hauteur 6 ns)

De même que pour la température, le dépôt d'énergie est accompagné d'un

### 5.3. ETUDE DES MÉCANISMES DE L'ENDOMMAGEMENT LASER À L'AIDE DE DÉFAUTS MODÈLES: CAS D'INCLUSIONS MÉTALLIQUES

gradient de pression d'une maille à l'autre. Pour prendre en compte ce phénomène hydrodynamique, le déplacement relatif des mailles est calculé au cours d'un pas de temps  $\Delta t$ . En particulier, on peut facilement imaginer que les mailles où la pression est élevée ont tendance à se détendre, compressant ainsi les mailles voisines.

Pour illustrer ceci, la figure 5.13 représente l'évolution au cours de l'impulsion laser ( $F = 1.6 \text{ J/cm}^2$ ) du rayon externe d'une bille d'or de 250 nm insérée dans une matrice de silice. Notons que dans ce cas, l'énergie déposée est relativement faible. Par conséquent, les déformations mécaniques sont négligeables. Ici la bille d'or ne se détend que de 1.5 nm au maximum. Néanmoins les contraintes peuvent devenir beaucoup plus importantes lorsque les énergies d'irradiation se rapprochent du seuil de claquage du matériau considéré. Dans ce cas, il est possible d'obtenir des variations mécaniques pouvant conduire à la fracture du matériau hôte.

L'ensemble de ces trois étapes nous permet d'avoir accès à l'évolution de la densité, de la température et de la pression des différents matériaux pendant un pas de temps  $\Delta t$ . La prise en compte de ces données pour l'itération suivante permet donc de suivre l'évolution de la température et de la pression de la bille d'or tout au long de l'impulsion laser même lorsque le matériau vient à changer d'état.

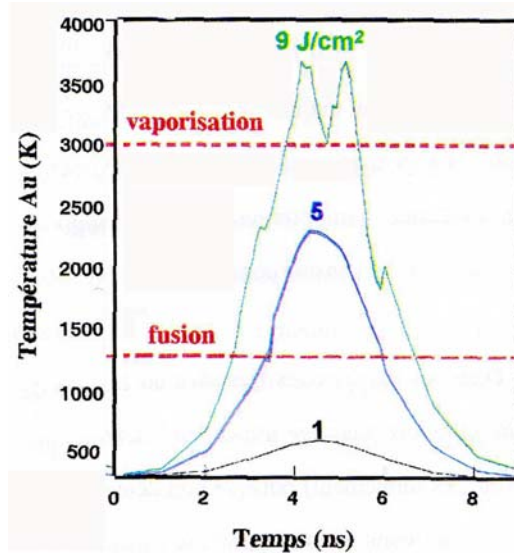


FIG. 5.14 – Evolution temporelle de la température d'une bille d'or de 3 nm pour trois fluences d'irradiation (impulsion gaussienne  $\lambda = 355 \text{ nm}$ ,  $\tau = 3 \text{ ns}$ )

La figure 5.14 est un exemple d'utilisation du code DELPOR pour suivre l'évolution temporelle de la température d'une bille d'or de 3 nm insérée dans



une matrice de silice pour trois fluences d'irradiation. Dans ce cas, l'étude précise de chaque itération montre en particulier que la température de l'or est homogène dans toutes les mailles au bout de quelques picosecondes seulement. On peut donc définir une température unique pour la bille au cours de l'impulsion. Notons que ceci n'est plus totalement vrai lorsque la taille de la bille dépasse quelques centaines de nanomètres.

Grâce à la connaissance des équations d'état multi-phases, cet exemple permet donc de mettre en évidence le changement d'état de l'or lorsque la fluence d'irradiation augmente (fusion puis vaporisation).

D'autres exemples de l'utilisation du code DELPOR seront présentés et commentés dans la suite de cette étude.

### 5.3.3 Mise en évidence d'étapes préliminaires à l'endommagement laser: le "pré-endommagement"

#### Introduction

L'étude préliminaire est réalisée sur des inclusions d'or de 600 nm notamment afin de faciliter l'observation de l'initiation de l'endommagement laser à l'aide d'un simple microscope optique équipé d'un mode Nomarski. Cette taille de bille est comparable à celle des défauts extrinsèques pouvant réellement se trouver dans des composants optiques (les nodules par exemple). Une étude en longueur d'onde (1064 nm et 355 nm) a été réalisée à l'aide des différents bancs de caractérisation de l'endommagement laser présents à l'Institut Fresnel et au CEA/CESTA. Dans le premier cas, les faisceaux laser sont fortement focalisés ( $8\text{-}12\text{ }\mu\text{m}$  à  $1/e^2$ ) alors que dans le second, l'irradiation se fait à l'aide de faisceaux millimétriques ( $0.6\text{-}1.4\text{ mm}$ ).

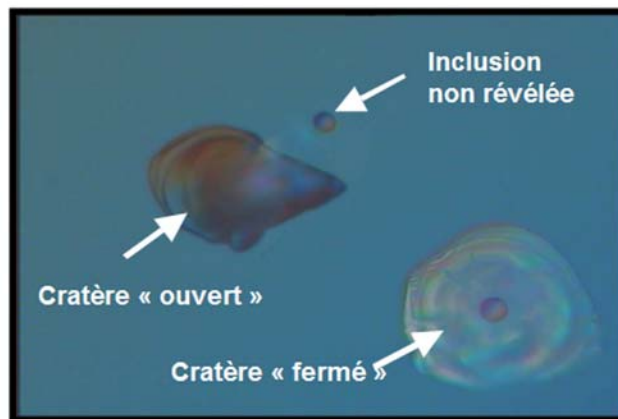


FIG. 5.15 – Image Nomarski ( $100\text{ }\mu\text{m} \times 100\text{ }\mu\text{m}$ ) révélant des effets collectifs lors d'une irradiation en faisceau large ( $600\text{ }\mu\text{m}$  à  $1/e^2$ )

### 5.3. ETUDE DES MÉCANISMES DE L'ENDOMMAGEMENT LASER À L'AIDE DE DÉFAUTS MODÈLES: CAS D'INCLUSIONS MÉTALLIQUES

La caractérisation de l'échantillon par microscopie à force atomique a révélé une densité d'inclusions de l'ordre de  $120 \pm 20$  sphères/ $mm^3$ . Cela signifie que dans le cas des faisceaux laser utilisés par le CEA/CESTA, plusieurs inclusions sont présentes en même temps sous le spot d'irradiation. Expérimentalement, ce type de configuration peut conduire à l'existence "d'effets collectifs" dans le processus d'endommagement laser (figure 5.15). Dans cet exemple, l'irradiation laser a conduit à la formation de deux cratères avec des morphologies très différentes. De plus, une troisième bille située à proximité n'a pas subi d'endommagement alors que la densité d'énergie déposée était bien supérieure au seuil de claquage. Ce comportement peut s'expliquer par l'existence d'une relaxation des contraintes du matériau au niveau du cratère voisin. Dans ce cas, les résultats semblent difficiles à interpréter puisque les seuils d'endommagement sont dépendants à la fois de la fluence d'irradiation et de la répartition des défauts sous le faisceau laser. Par conséquent afin d'éviter ces effets collectifs, la suite de l'étude est réalisée à l'aide de faisceaux focalisés ( $8-12 \mu m$  à  $1/e^2$ ). Il est ainsi possible de viser avec précision un défaut unique pour étudier son comportement sous irradiation laser.

#### Résultats obtenus à 355 nm

La procédure de test consiste, dans un premier temps, à irradier en tir unique des billes identiques à différentes fluences à l'aide du banc d'endommagement laser présenté au chapitre 2 puis, dans un second temps, à observer les modifications pouvant apparaître au niveau de la bille ou en surface.

Du fait de la petite dimension du faisceau d'irradiation, il est possible de tester selon une procédure de type 1:1, la tenue au flux laser de la couche de silice dans des régions sans défaut modèle. A 355 nm, le seuil d'endommagement (noté  $T_c$ ) de la couche est donc estimé à  $20 \pm 2$  ( $J/cm^2$ ).

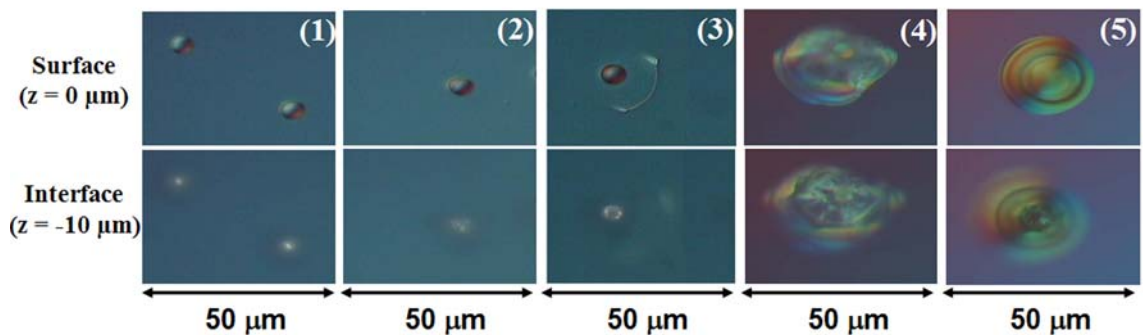


FIG. 5.16 – Images Nomarski (en surface et à l'interface entre les deux couches de silice) représentant l'évolution de la morphologie des endommagements en fonction de la fluence appliquée

La figure 5.16 représente l'évolution de la morphologie des endommagements au niveau des inclusions d'or en fonction de la fluence d'irradiation. Dans chaque cas, la détection d'un endommagement éventuel se fait en focalisant le microscope d'abord à l'interface entre les deux couches (localisation de l'inclusion d'or) puis en surface (dôme de silice). En fonction de la densité d'énergie appliquée plusieurs cas apparaissent:

- (1): Avant irradiation, on vérifie la présence d'une inclusion d'or à l'interface entre les deux couches et d'un dôme de silice intacte en surface de l'échantillon.
- (2): Lorsque la densité d'énergie augmente ( $F \sim 0.4 J/cm^2$ ), on observe à l'interface une "diffusion" de l'or dans la matrice de silice environnante. Notons que le dôme de silice en surface, quant à lui, est toujours intact. Une étude plus précise en microscopie à force atomique confirme cette observation. Dans ce cas, le défaut est modifié sans qu'aucun endommagement physique ne soit visible en surface. On définit ici une étape de "**pré-endommagement**" du matériau.
- (3): En augmentant la fluence d'irradiation ( $F \sim 0.6 J/cm^2$ ), on observe une disparition presque totale de l'or au niveau de l'interface accompagnée d'une légère modification de la surface. Dans un premier temps il est possible d'observer un gonflement de la couche de silice puis l'apparition d'une craquelure autour du dôme (figure 5.16). Ce résultat est à mettre en relation avec les observations similaires de S. Papernov décrites précédemment [94].
- (4) et (5): Pour des fluences supérieures ( $F \sim 1 J/cm^2$ ), on observe l'apparition d'un cratère en lieu et place de l'inclusion d'or.

Une étude statistique effectuée sur un grand nombre de billes identiques (environ 10 par fluence) permet d'associer précisément un seuil pour chacune de ces étapes.  $T_p$  désigne le pré-endommagement,  $T_s$  l'endommagement de la couche au niveau de l'inclusion et  $T_c$  l'endommagement de la couche sans inclusion. Les valeurs de ces différents seuils sont données dans le tableau 5.1.

	$T_p(J/cm^2)$	$T_s(J/cm^2)$	$T_c(J/cm^2)$
$\lambda = 355nm$	$\sim 0.4$	$0.8 \pm 0.1$	$20 \pm 2$

TAB. 5.1 – Valeurs statistiques des différents seuils mesurés à 355 nm ( $T_p$  = seuil de pré-endommagement,  $T_s$  = seuil d'endommagement lié à la bille d'or,  $T_c$  = seuil de la couche sans bille)

Le premier résultat important issu de cette étude confirme que les billes d'or jouent le rôle de précurseurs de l'endommagement laser pour la couche de silice.

### 5.3. ETUDE DES MÉCANISMES DE L'ENDOMMAGEMENT LASER À L'AIDE DE DÉFAUTS MODÈLES: CAS D'INCLUSIONS MÉTALLIQUES

En effet, d'une part les cratères apparaissent à l'endroit exact des inclusions d'or et d'autre part la différence entre les valeurs de seuil  $T_c$  ( $20 \text{ J/cm}^2$ ) et  $T_s$  ( $0.8 \text{ J/cm}^2$ ) est significative d'une dégradation de la tenue au flux laser au niveau de ces inclusions d'or.

Le second résultat est la mise en évidence d'une étape de "pré-endommagement" (modification du défaut sans apparition de dommages en surface) au dessus d'un seuil évalué ici à  $T_p = 0.4 \text{ J/cm}^2$ .

#### Résultats obtenus à 1064 nm

Le même type d'étude a été réalisé à 1064 nm. Afin d'éviter l'apparition d'effets collectifs les irradiations ont également été réalisées à l'aide d'un faisceau focalisé ( $12 \mu\text{m}$ ). Des résultats équivalents à ceux obtenus à 355 nm ont été mis en évidence. Seules les valeurs des seuils respectifs sont ici modifiées (tableau 5.2).

	$T_p(\text{J/cm}^2)$	$T_s(\text{J/cm}^2)$	$T_c(\text{J/cm}^2)$
$\lambda = 1064 \text{ nm}$	$\sim 4$	$9 \pm 1$	$50 \pm 2$

TAB. 5.2 – Valeurs statistiques des différentes seuils mesurés à 1064 nm ( $T_p$  = seuil de pré-endommagement,  $T_s$  = seuil d'endommagement lié à la bille d'or,  $T_c$  = seuil de la couche sans bille)

En complément des observations au microscope Nomarski, le pré-endommagement du matériau a été également observé en microscopie photothermique. Notons que cette étude n'a pas été réalisée à 355 nm car notre microscope photothermique permet actuellement de mesurer uniquement l'absorption du matériau à 1064 nm (longueur d'onde du faisceau pompe).

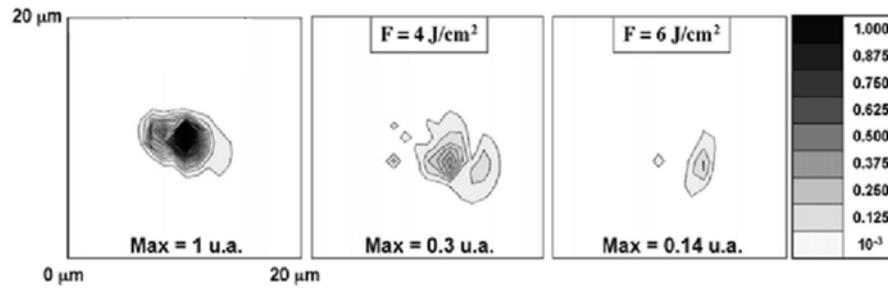


FIG. 5.17 – Cartographies photothermiques ( $20\mu\text{m} \times 20\mu\text{m}$ ) d'une bille d'or de 600 nm après différentes irradiation à 1064 nm

La figure 5.17 représente l'évolution de l'absorption d'une bille d'or de 600 nm avant et après irradiation en fonction de la fluence d'irradiation. Les densités d'énergie utilisées ici restent inférieures au seuil d'endommagement de la couche

lié à la bille d'or (noté  $T_s$ ). Expérimentalement, on observe après irradiation une décroissance de l'absorption optique de l'inclusion. Cette décroissance est la signature d'une modification de la particule au cours de l'irradiation. Ceci précise la nature de ce pré-endommagement. Cette décroissance de l'absorption totale de l'inclusion pourrait être liée à une diffusion de l'or dans la matrice de silice environnante.

### Simulation numérique

L'utilisation du code DELPOR nous permet d'estimer la température et la pression au niveau de la bille d'or au cours de ces irradiations laser. La figure 5.18 représente l'évolution de la température maximale atteinte par la bille d'or de 600 nm au cours de l'irradiation en fonction de la fluence.

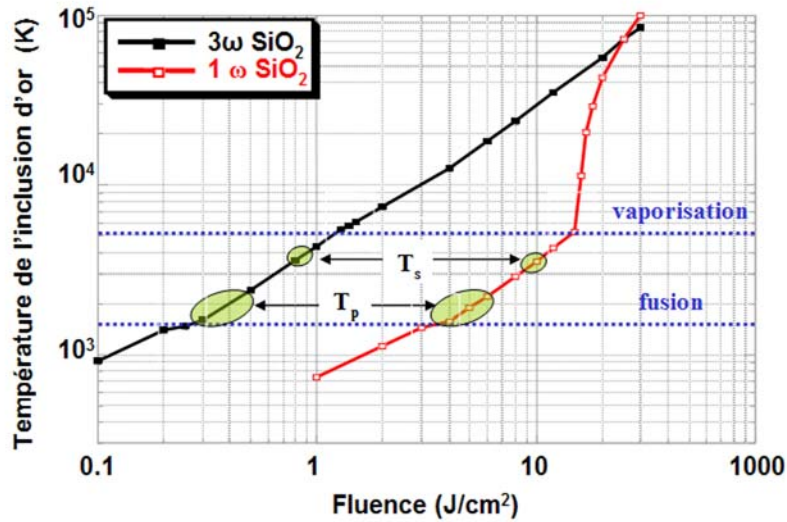


FIG. 5.18 – Simulation de la température maximale de l'inclusion d'or en fonction de la fluence d'irradiation pour les deux longueurs d'onde d'irradiation (1064 nm et 355 nm)

La comparaison des résultats expérimentaux et des données théoriques montre que la situation de pré-endommagement observée (notée  $T_p$  sur la figure) correspond pour les deux longueurs d'onde au cas où l'or atteint sa température de fusion. La diminution de l'absorption optique mise en évidence à l'aide du microscope photothermique peut ainsi s'expliquer par la fusion de la bille d'or suivie d'une diffusion de la matière dans la silice environnante. Notons également que dans le cas des premières modifications de surface (notées  $T_s$  sur la figure), on se rapproche de la température de vaporisation du métal.

### 5.3. ETUDE DES MÉCANISMES DE L'ENDOMMAGEMENT LASER À L'AIDE DE DÉFAUTS MODÈLES: CAS D'INCLUSIONS MÉTALLIQUES

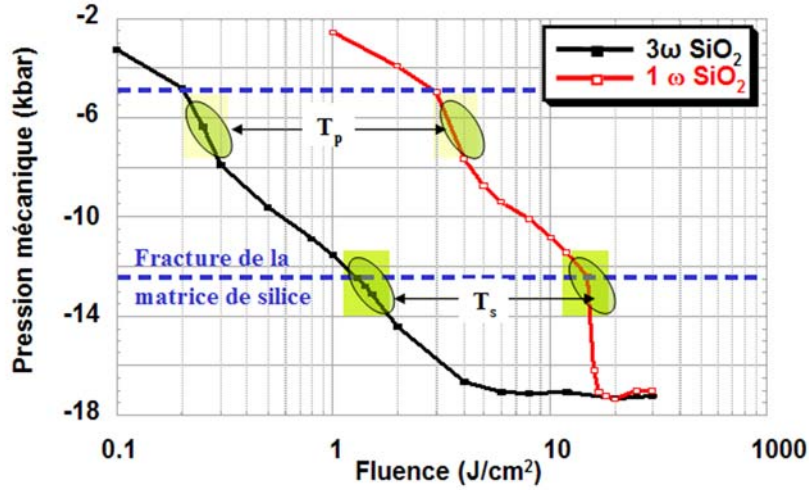


FIG. 5.19 – Simulation de la pression mécanique exercée sur la silice par l'inclusion d'or en fonction de la fluence d'irradiation pour les deux longueurs d'onde d'irradiation (1064 nm et 355 nm)

En complément, la figure 5.19 donne l'évolution des contraintes mécaniques exercées par la bille d'or sur la matrice de silice hôte en fonction de la fluence d'irradiation. La comparaison des données expérimentales et théoriques montre que l'apparition des premières craquelures en surface (fluence  $\simeq T_s$ ) correspond également au cas où la pression au niveau de la bille d'or dépasse le seuil de fracture de la silice environnante.

L'ensemble de ces deux points constitue des informations essentielles sur le mécanisme d'initiation de l'endommagement du matériau autour du défaut modèle.

### Conclusion

Les résultats préliminaires obtenus dans l'IR (1064 nm) et dans l'UV (355 nm) montrent clairement que l'étude de l'endommagement laser sur des inclusions d'or dans la silice permet de discriminer différentes étapes dans l'initiation de l'endommagement laser:

- A basses fluences, la comparaison des résultats expérimentaux et des données théoriques permet de corréler les étapes de pré-endommagement à la fusion de l'or.
- Pour des fluences plus élevées (proches du seuil de claquage), l'endommagement du matériau hôte peut être la conséquence d'une vaporisation du

défaut ou simplement de l'augmentation des pressions exercées par la bille d'or en fusion sur la matrice de silice. Expérimentalement, les incertitudes de mesures ne permettent pas de discriminer un des deux processus.

Pour aller plus loin dans cette investigation, et afin d'effectuer une étude quantitative fine de l'étape de pré-endommagement, nous utilisons maintenant le microscope photothermique haute-résolution comme moyen de diagnostic pour étudier précisément l'influence d'une irradiation laser sur des billes d'or de plus petite dimension (défauts "intrinsèques").

### 5.3.4 Etude quantitative de l'étape de "pré-endommagement"

Le diagnostic d'endommagement est ici réalisé par photothermie. La possibilité d'effectuer une étude in-situ de l'endommagement nous permet d'étudier de façon précise le comportement de billes d'or nanométriques soumises à différents types d'irradiation laser (tir unique ou tirs cumulés).

D'un point de vue expérimental, nous utilisons des billes d'or représentatives des centres précurseurs "intrinsèques" (quelques dizaines à quelques centaines de nanomètres) tout en restant dans la gamme de sensibilité de détection de nos appareils. Nous avons montré au chapitre 4 que le microscope photothermique dans sa configuration actuelle permet de détecter des billes d'or jusqu'à 50 nm. La caractérisation AFM d'un nouvel échantillon "modèle" réalisé par le CEA/LETI met en évidence des billes d'or dont la taille varie approximativement de 120 à 350 nm selon une distribution gaussienne centrée sur  $(250 \pm 20)$  nm. Comme l'étude du pré-endommagement en fonction du mode d'irradiation nécessite l'utilisation d'un grand nombre de défauts modèles identiques, nous réalisons donc les différentes mesures sur les particules les plus représentatives de l'échantillon (c'est à dire des billes de **250 nm**).

#### Absorption initiale des inclusions d'or et choix de la taille de bille optimale pour l'étude

Le microscope photothermique permet, à l'aide d'une calibration appropriée [4], de mesurer l'absorption totale de ces défauts modèles. Parallèlement, la théorie de Mie est utilisée pour calculer la puissance absorbée par une sphère d'or ( $n=0.281$ ,  $k=7.253$ ) insérée dans une matrice de silice en fonction de sa taille. Le faisceau gaussien incident ( $\lambda = 1064$  nm,  $\omega_0 = 1 \mu\text{m}$  à  $1/e^2$ ) est simulé par un faisceau top-hat de 800 nm (équivalent en terme d'énergie transportée). La figure 5.20 représente l'évolution théorique de l'absorption d'une bille d'or en fonction de sa taille ainsi que les résultats expérimentaux obtenus sur trois billes de tailles différentes (120 nm, 160 nm et 250 nm).

### 5.3. ETUDE DES MÉCANISMES DE L'ENDOMMAGEMENT LASER À L'AIDE DE DÉFAUTS MODÈLES: CAS D'INCLUSIONS MÉTALLIQUES

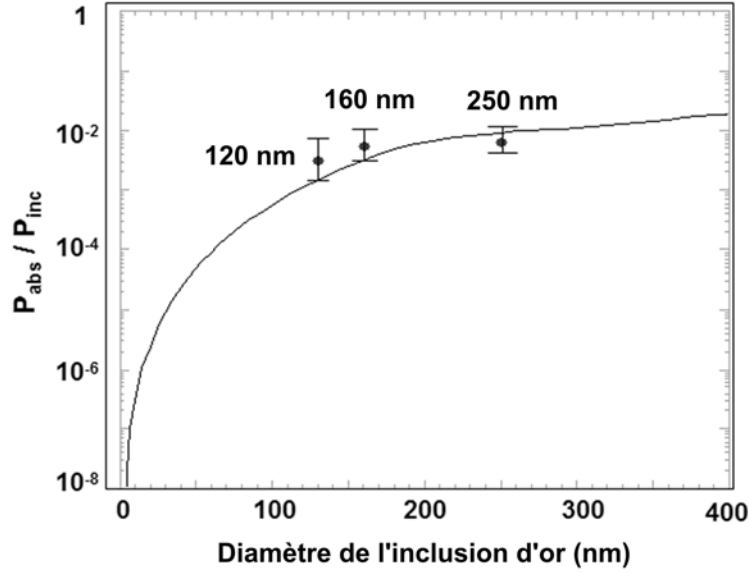


FIG. 5.20 – Absorption théorique et expérimentale d'une bille d'or en fonction de sa taille à 1064 nm

- L'évolution expérimentale de l'absorption d'une bille d'or en fonction de sa taille est en accord avec l'évolution décrite par la théorie de Mie. Les procédures de mesure et de calibration utilisées ici semblent donc pertinentes.
- Pour les particules d'or inférieures à 200 nm, une erreur dans la détermination de la taille conduit à des variations importantes en termes d'absorption. Le choix des billes de 250 nm pour cette étude permet donc de minimiser les incertitudes de mesure et par conséquent d'accroître la précision de détermination du seuil de pré-endommagement.

#### Optimisation de la détermination du seuil de pré-endommagement sur les inclusions d'or dans la silice

Le couplage in-situ d'un banc d'endommagement laser avec le microscope photothermique permet d'obtenir une métrologie fiable sur laquelle il est possible de s'appuyer afin de caractériser précisément l'étape de pré-endommagement. En particulier, l'enregistrement du profil spatial du laser d'irradiation à chaque tir permet de définir la fluence réelle intervenant dans le processus d'endommagement laser. Dans notre cas, la mise en évidence d'un seuil de pré-endommagement généralement très faible, implique la connaissance exacte de l'énergie déposée autour de la bille durant une impulsion. Or la métrologie décrite au chapitre 2



implique une mesure de la fluence d'irradiation en amont de l'échantillon à tester et ne prend donc pas en compte l'influence du matériau lui même sur le faisceau incident. En particulier, le dôme de silice qui apparaît au-dessus de la bille peut jouer le rôle d'une lentille dans la propagation du faisceau et ainsi la densité d'énergie autour de l'inclusion d'or est modifiée par rapport à la valeur mesurée en surface de l'échantillon.

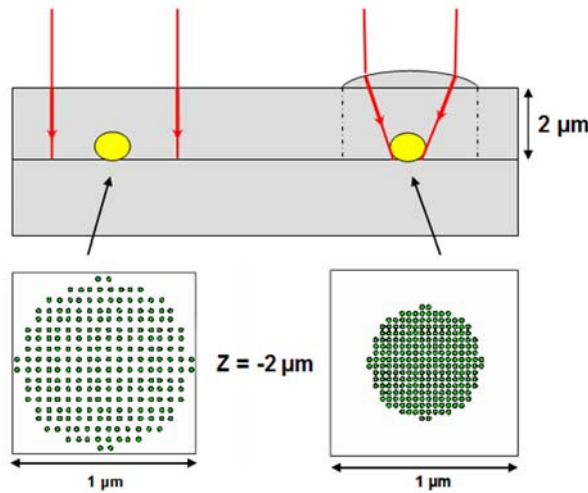


FIG. 5.21 – Influence du dôme de silice sur la propagation du faisceau incident: Simulation de la distribution spatiale d'énergie au niveau de la bille ( $z = -2\mu\text{m}$ )

Afin d'estimer l'erreur commise lors de la détermination de la fluence d'irradiation au niveau de la bille d'or, nous avons simulé la propagation d'un faisceau gaussien à travers une telle surface à l'aide du logiciel de tracé de rayon Zemax. Les caractéristiques géométriques de cette "lentille" sont obtenues par microscopie à force atomique. La figure 5.21 représente la répartition spatiale du faisceau dans une région de  $1\mu\text{m}$  autour de l'inclusion suivant que l'on considère ou non la présence du dôme. La prise en compte de la surface réelle de l'échantillon (dôme de silice à l'aplomb de la particule d'or) montre que la fluence au niveau de la bille est approximativement deux fois plus importante que ce que nous estimons classiquement à l'aide du détecteur pyroélectrique et de la caméra CCD. Par conséquent, tous les résultats présentés dans cette étude tiennent dorénavant compte de cette "perturbation" liée à la géométrie de la surface du composant contenant ces défauts modèles.

### 5.3. ETUDE DES MÉCANISMES DE L'ENDOMMAGEMENT LASER À L'AIDE DE DÉFAUTS MODÈLES: CAS D'INCLUSIONS MÉTALLIQUES

#### Observation par microscopie photothermique du pré-endommagement

##### (1) *Procédure de test:*

La procédure de test consiste à irradier le défaut à différentes fluences (inférieures au seuil d'endommagement) puis à l'aide de cartographies photothermiques effectuées avant et après tir, de détecter les éventuelles modifications pouvant apparaître. Dans notre cas, l'évolution du défaut est suivie en terme de modification de son absorption optique.

L'irradiation des défauts modèles se fait dans un premier temps selon une procédure basée sur des tirs uniques (chaque particule ne reçoit qu'une seule impulsion laser). La figure 5.22 représente l'évolution du signal photothermique de billes de 250 nm soumises à des irradiations laser ( $\lambda = 1064$  nm) de  $0.5 J/cm^2$  à  $7.5 J/cm^2$ . La stabilité temporelle du signal photothermique mesuré est ici de l'ordre de 10 %.

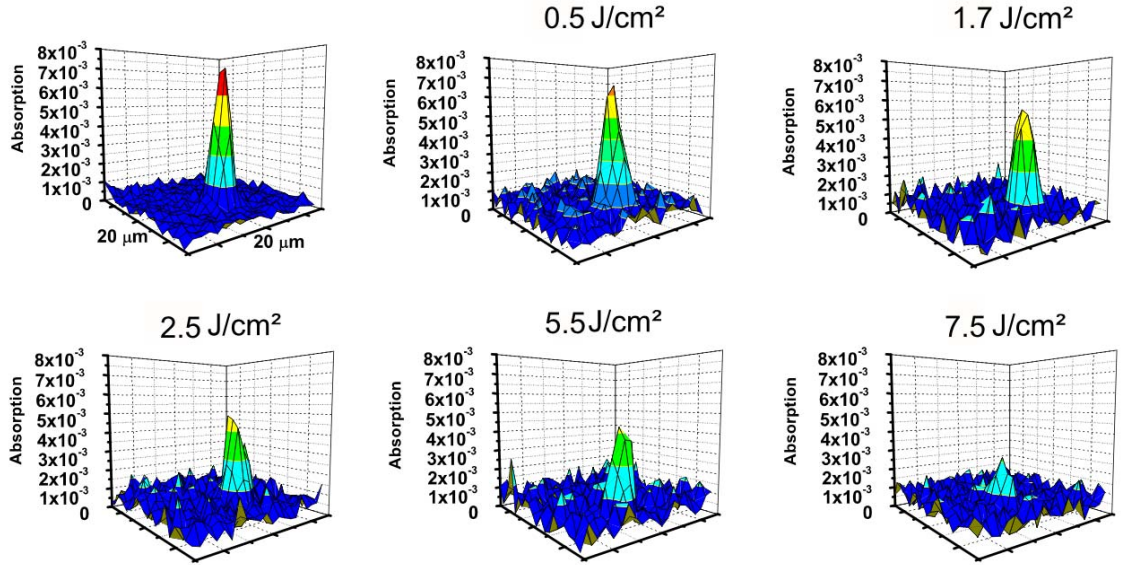


FIG. 5.22 – *Evolution de la cartographie d'absorption à 1064 nm de billes d'or de 250 nm en fonction de la fluence d'irradiation*

Toutes les irradiations présentées ici sont effectuées sous seuil d'endommagement. En effet une mesure statistique parallèle montre que l'endommagement de la couche de silice (apparition d'un cratère) par la bille d'or se produit pour des fluences de l'ordre de  $11 J/cm^2$  ( $T_s$ ). Nous sommes donc bien dans le cas de pré-endommagement pour lequel aucune modification physique n'est visible en surface. Une étude AFM a posteriori des zones étudiées permet de s'en assurer.

(2) *Résultats expérimentaux:*

L'absorption optique du défaut considéré correspond à la valeur maximale du signal photothermique d'une cartographie (cas où l'inclusion d'or de 250 nm est située au centre du faisceau laser pompe de diamètre  $1\ \mu\text{m}$  à  $1/e^2$ ).

La figure 5.23 représente l'évolution de l'absorption optique d'une particule d'or de 250 nm après irradiation laser à différentes fluences ( $\lambda = 1064\ \text{nm}$ ). Les résultats sont normalisés par rapport à la mesure effectuée sur une bille de même diamètre non irradiée.

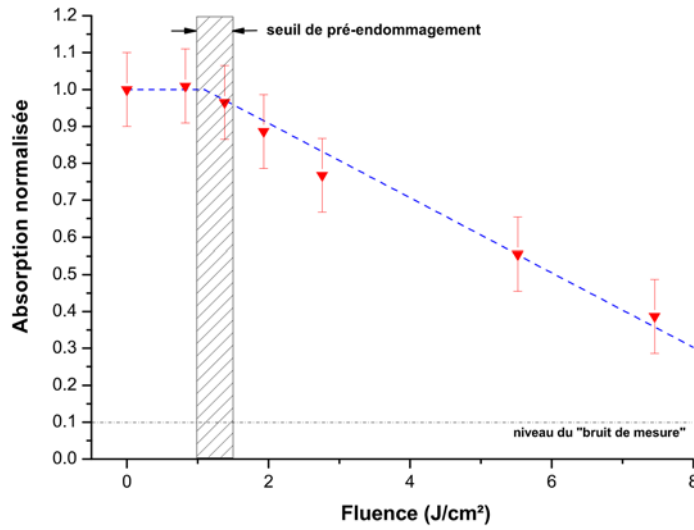


FIG. 5.23 – Evolution relative de l'absorption d'une bille d'or de 250 nm pour des fluences d'irradiation inférieures au seuil  $T_s$

Les modifications mises en évidence ici constituent bien l'initiation du processus d'endommagement puisque les fluences d'irradiation sont toutes inférieures au seuil d'endommagement de la couche ( $F < T_s < T_p$ )

A basse fluence ( $< 1.5\ \text{J}/\text{cm}^2$ ), l'absorption totale de l'inclusion d'or reste constante malgré l'irradiation laser. Puis lorsque la fluence augmente, on observe expérimentalement une forte décroissance de l'absorption de la bille proportionnelle à la densité d'énergie déposée. Une seconde cartographie photothermique réalisée sur chaque bille d'or irradiée permet de conclure quant à l'irréversibilité de la modification. Sur la base de ce résultat, il est donc possible de définir comme précédemment un seuil spécifique de "pré-endommagement" ( $T_p$ ). Le tableau 5.3 regroupe l'ensemble des données relatives aux différents seuils mesurés à 1064 nm dans le cas de billes d'or de 250 nm.

La détermination d'un seuil de pré-endommagement sept fois plus faible que celui mesuré pour le claquage de la couche de silice confirme les résultats préli-

### 5.3. ETUDE DES MÉCANISMES DE L'ENDOMMAGEMENT LASER À L'AIDE DE DÉFAUTS MODÈLES: CAS D'INCLUSIONS MÉTALLIQUES

	$T_p(J/cm^2)$	$T_s(J/cm^2)$	$T_c(J/cm^2)$
$\lambda = 1064nm$	$\sim 1.5$	$11 \pm 1$	$50 \pm 2$

TAB. 5.3 – Valeurs des différents seuils mesurés à 1064 nm ( $T_p$  = seuil de pré-endommagement,  $T_s$  = seuil d'endommagement lié à la bille d'or,  $T_c$  = seuil de la couche sans bille)

minaires obtenus sur les billes de 600 nm. Notons ici que l'utilisation du microscope photothermique comme moyen de diagnostic permet d'obtenir un résultat beaucoup plus précis pour la détermination du seuil de pré-endommagement et de quantifier l'évolution du défaut sous irradiation. Afin d'interpréter ces variations d'absorption liées à l'irradiation du défaut, nos résultats expérimentaux sont complétés par le calcul des propriétés thermiques de l'inclusion d'or durant l'irradiation laser.

#### (3) Simulation numérique:

Nous utilisons le code DELPOR pour calculer l'interaction du faisceau laser incident ( $\tau = 6$  ns,  $\lambda = 1064$  nm) avec une sphère d'or de diamètre 250 nm isolée dans une matrice de silice.

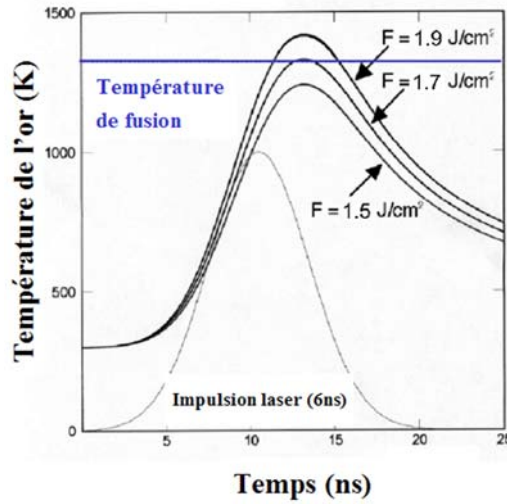


FIG. 5.24 – Evolution de la température de l'inclusion d'or de 250 nm durant l'impulsion laser ( $\lambda = 1064$  nm)

La thermalisation de la bille d'or se fait en 100 ps environ, ce qui reste négligeable devant la durée de l'impulsion. De ce fait, nous pouvons supposer que la distribution de température dans l'inclusion est quasiment homogène.

La figure 5.24 illustre l'évolution de la température de la bille d'or en fonc-

tion du temps pour différentes fluences d'irradiation. La température maximale atteinte par l'inclusion augmente linéairement avec la fluence jusqu'à la transition solide/liquide de l'or ( $F = 1.7 \text{ J/cm}^2$ ) où un changement de pente apparaît (figure 5.25).

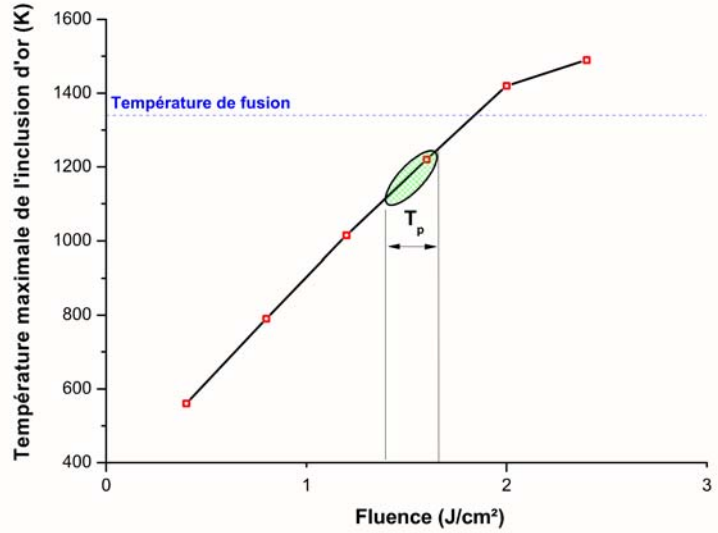


FIG. 5.25 – Température maximale atteinte par l'inclusion d'or en fonction de la fluence d'irradiation ( $\lambda = 1064 \text{ nm}$ )

En comparant les résultats expérimentaux aux données théoriques, on observe que le seuil de pré-endommagement ( $T_p = 1.5 \text{ J/cm}^2$ ) est légèrement plus faible que la fluence nécessaire à la fusion de l'inclusion d'or ( $1.7 \text{ J/cm}^2$ ). Expérimentalement, la fluence d'irradiation qui induit les premières modifications sur l'inclusion correspond à une température de l'ordre de 1100 K. Dans cette gamme de température, il est possible que l'or diffuse dans la silice environnante même si le point de fusion n'a pas été atteint. Néanmoins, les simulations montrent que cette température élevée ne persiste dans la bille d'or qu'une vingtaine de nanosecondes (figure 5.24) limitant ainsi fortement ce processus de diffusion atomique en phase solide. De plus, les incertitudes sur les paramètres utilisés dans la simulation (taille et forme de l'inclusion, contact thermique silice/or, durée et impulsion et profil temporel du faisceau d'irradiation) empêchent de donner une réelle signification à cette petite différence de fluence. A titre d'exemple, nous avons montré précédemment que le laser d'irradiation utilisé est temporellement multimode et par conséquent nous sommes obligés de définir une durée d'impulsion moyenne. Or une erreur de 1 ns dans la détermination de cette durée d'impulsion engendre dans le code des variations de 10 % dans la détermination de la fluence nécessaire à la fusion de l'or. Ce problème illustre bien l'importance d'une métrologie robuste pour la détermination des seuils d'endommagement la-

### 5.3. ETUDE DES MÉCANISMES DE L'ENDOMMAGEMENT LASER À L'AIDE DE DÉFAUTS MODÈLES: CAS D'INCLUSIONS MÉTALLIQUES

ser et l'interprétation des résultats expérimentaux.

La comparaison des données expérimentales et des simulations d'interaction laser-matière montre que pour les billes de 250 nm, le pré-endommagement semble quand même lié à la fusion de l'inclusion d'or. Ce résultat est en parfait accord avec les conclusions précédentes au sujet des billes de 600 nm.

#### Effet des tirs répétés sur l'évolution du défaut modèle

Les travaux effectués sur la fatigue des composants optiques en tirs cumulés [32, 107], montrent que la réponse d'un matériau à une succession de tirs est très différente de celle obtenue en tir unique. Nous nous intéressons donc ici à l'évolution de ces défauts modèles lors d'une irradiation en tirs répétés. Pour cela, une bille d'or de 250 nm est irradiée plusieurs fois avec des fluences croissantes. Après chaque impulsion laser (sous seuil d'endommagement), une cartographie photothermique de la zone irradiée est réalisée afin d'enregistrer les modifications éventuelles pouvant apparaître au niveau de l'inclusion d'or.

##### (1) Résultats expérimentaux:

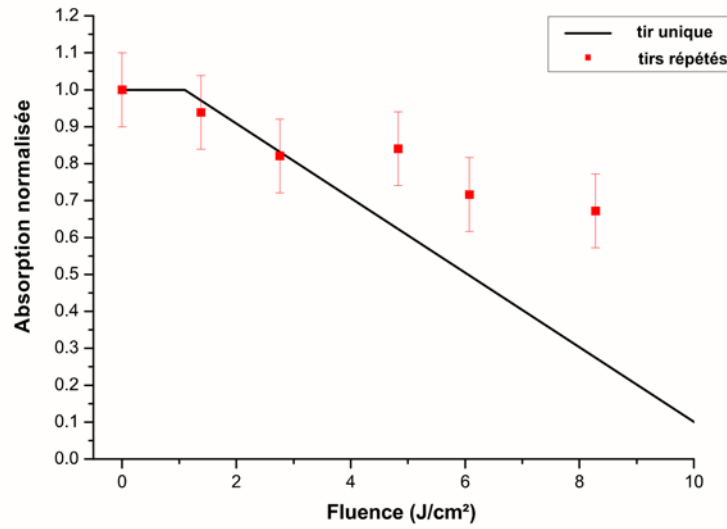


FIG. 5.26 – Evolution de l'absorption d'une inclusion d'or de 250 nm soumise à une succession de tirs lasers sous seuil d'endommagement

La figure 5.26 montre l'évolution de l'absorption de la bille d'or après différentes irradiations successives (cf. tableau 5.4 pour les densités d'énergie associées à chaque tir). Les résultats sont comparés à l'évolution obtenue précédemment sous tir unique.

Numéro tir	Fluences cumulées ( $J/cm^2$ )
0	0
1	1.4
2	1.4 + 2.7
3	1.4 + 2.7 + 5
4	1.4 + 2.7 + 5 + 6.1
6	1.4 + 2.7 + 5 + 6.1 + 8.5

TAB. 5.4 – Valeurs des fluences utilisées pour l'irradiation d'une bille de 250 nm en tirs répétés

Le comportement de l'inclusion métallique en fonction de la fluence d'irradiation dépend fortement de la procédure de tir utilisée. Pour des fluences inférieures au seuil de pré-endommagement, l'accumulation de tirs n'induit pas de modification d'absorption de la particule. Ensuite, pour des fluences plus importantes, l'évolution dépend du fait que la particule a déjà reçu ou non d'autres irradiations à des fluences plus faibles. Dans le cas de tirs cumulés, la décroissance de l'absorption est plus lente que sous tir unique pour la même densité d'énergie déposée. Ce phénomène est probablement dû à une modification du défaut dès les premiers tirs, modification qui pourrait par exemple, le rendre moins absorbant pour les tirs suivants à plus hautes fluences.

## (2) *Modélisation et discussion:*

Des travaux complémentaires effectués par Jonnard et al. [99] sur ces défauts modèles montrent que lors du refroidissement, l'or peut coalescer en plus petits clusters. Expérimentalement, les fluences d'irradiation sont suffisantes pour atteindre le point de fusion de l'or et le temps entre deux tirs ( $> 10$  mn du fait de la durée du relevé cartographique de l'absorption) permet le refroidissement lent du matériau. Dans ces conditions, nous pouvons supposer que la fusion de l'or dès les premiers tirs au dessus du seuil de pré-endommagement est suivie d'une formation de clusters d'or de plus petite taille dans un environnement proche.

La théorie de Mie nous permet de calculer la quantité d'énergie absorbée par ces  $N$  sphères identiques au cours de l'irradiation laser (figure 5.27). Dans ce modèle, le laser d'irradiation est un faisceau top-hat de 800 nm, chaque particule d'or est supposée indépendante vis à vis de ses proches voisines et la taille de chacun de ces clusters identiques est obtenue en écrivant la conservation de la quantité de matière.

Compte tenue de la taille du faisceau d'irradiation utilisé ( $20 \mu m$  à  $1/e^2$ ), nous pouvons facilement imaginer que même après reformation des divers clusters, l'ensemble de l'or est toujours situé sous le spot laser. Ainsi, l'absorption totale "vue" par le faisceau laser incident ( $A$ ) est la somme des contributions de chaque

### 5.3. ETUDE DES MÉCANISMES DE L'ENDOMMAGEMENT LASER À L'AIDE DE DÉFAUTS MODÈLES: CAS D'INCLUSIONS MÉTALLIQUES

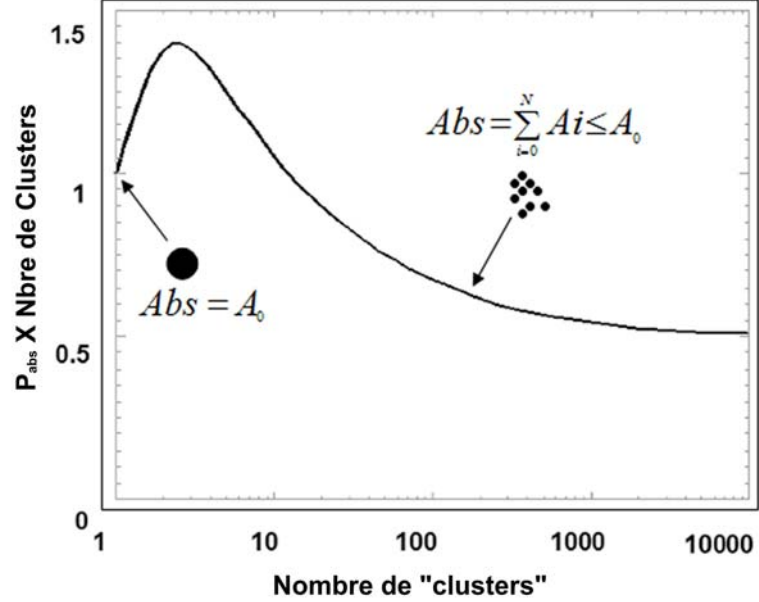


FIG. 5.27 – Énergie absorbée par  $N$  clusters d'or de taille identique. La taille du cluster est obtenue par conservation de la matière à partir d'une bulle unique de 250 nm

cluster ( $A_i$ ).

$$A = \sum_{i=1}^N A_i \quad (5.9)$$

En considérant les résultats théoriques de la figure 5.27, nous pouvons nous rendre compte que l'absorption globale de 100 clusters par exemple (diamètre autour de 50 nm) est 25% plus faible que l'absorption d'une seule bille de 250 nm ( $A_0$ ) avec la même quantité d'or

$$A = \sum_{i=1}^N A_i < A_0 \quad (5.10)$$

En terme d'endommagement laser, ces différences d'absorption signifient que l'interaction entre le faisceau laser incident et le défaut "modèle" sera différente suivant que l'inclusion métallique sera intacte ou fractionnée en  $N$  clusters de plus petite taille. En effet dans le second cas, la quantité d'énergie absorbée durant une impulsion laser est plus faible et donc la température atteinte par l'or sera elle aussi plus basse. Dans ces conditions, la fusion ne sera pas atteinte ou partiellement et les modifications induites seront donc plus faibles. Le modèle développé ici est donc en accord avec l'évolution du signal photothermique présentée figure 5.26. Nous pouvons de plus remarquer qu'il existe théoriquement



une taille critique des clusters en dessous de laquelle l'absorption globale de l'or se stabilise.

## Conclusion

Le microscope photothermique haute résolution nous a permis de confirmer les observations réalisées dans le cas des inclusions d'or de 600 nm. Nous définissons ici précisément le seuil de "pré-endommagement" (noté  $T_p$ ). Cette valeur correspond à la plus petite fluence d'irradiation qui produit une modification de l'absorption optique du défaut. Des simulations basées sur la théorie de Mie permettent d'identifier encore une fois le seuil  $T_p$  avec la fusion de l'or.

La comparaison du comportement de ces défauts modèles suivant le type d'irradiation (tir unique ou tirs répétés) montre que dans le cas d'irradiations successives et croissantes de l'inclusion, l'absorption optique évolue plus lentement à haute fluence que dans le cas d'un tir unique. Le modèle théorique proposé associe ce phénomène à la formations de clusters de plus petite taille moins absorbants. Son extrapolation montre une stabilisation de l'absorption après un certain nombre de divisions. Ainsi, dans un objectif de conditionnement des défauts précurseurs absorbants, il semble nécessaire d'utiliser une procédure de pré-irradiation en tir unique plutôt qu'en tirs cumulés.

### 5.3.5 Etude de la modification du matériau hôte lors de l'endommagement - Effets collectifs

#### Introduction

Nous utilisons des échantillons réalisés par le LASIM (Lyon). Les défauts modèles (3 nm) sont comparables aux défauts absorbants intrinsèques réellement présents dans les silices ultra-pures. Deux échantillons avec des densités de défauts différentes ont été réalisés (tableau 5.5).

Échantillon	Densité de défauts (def/ $\mu m^2$ )	Profondeur d'enfouissement
LASIM 1	10	130 nm
LASIM 2	1	30 nm

TAB. 5.5 – Densités de défauts présents dans les échantillons LASIM

L'étude précédente, visant à mettre en évidence l'étape de pré-endommagement par microscopie photothermique, ne peut pas être transposée au cas étudiée ici. En effet, la taille moyenne de ces défauts modèles est en dehors du domaine de sensibilité de nos appareils de mesure. Par conséquent, il est impossible d'observer l'évolution d'un défaut unique en fonction de la densité d'énergie déposée durant l'irradiation. Néanmoins, d'autres moyens de caractérisation peuvent être

### 5.3. ETUDE DES MÉCANISMES DE L'ENDOMMAGEMENT LASER À L'AIDE DE DÉFAUTS MODÈLES: CAS D'INCLUSIONS MÉTALLIQUES

utilisés afin de mettre en évidence de façon macroscopique les mécanismes de l'endommagement laser:

- La microscopie à force atomique permet de suivre précisément l'évolution de l'état de surface du composant étudié en fonction de la fluence d'irradiation.
- Une étude couplée endommagement laser/Spectroscopie de masse (effectuée sur l'installation du ANL "Argonne National Laboratory") sert à mettre en évidence les espèces chimiques pouvant être émises au cours de l'irradiation.
- Des mesures de photothermie non-résolues spatialement sont également utilisées pour suivre l'évolution de l'absorption globale du matériau en fonction de la fluence d'irradiation.

#### Etude du pré-endommagement:

##### (1) *Densité de défauts modèles* = $10 \text{ def}/\mu\text{m}^2$

L'étude s'est effectuée en deux étapes. La première partie, réalisée par Jean-Luc Rullier (CEA/CESTA) au ANL, avait pour but de détecter par spectroscopie de masse l'évolution des inclusions d'or sous tirs lasers. La caractérisation du matériau irradié a ensuite été réalisé à l'Institut Fresnel. Les résultats de ces différentes campagnes de mesures sont présentés ici.

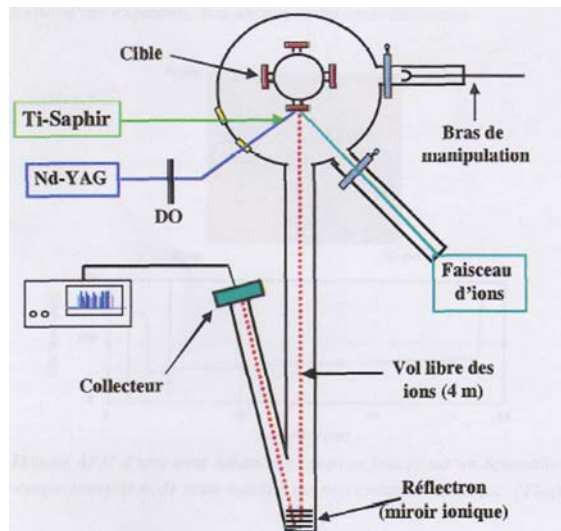


FIG. 5.28 – *Dispositif expérimental du spectromètre de masse par mesure de temps de vol (TOF) couplé à un laser d'irradiation (ANL)*

Le schéma de la figure 5.28 présente les principaux éléments de l'installation du ANL. Le laser principal d'irradiation est un Nd:YAG pompé par diode et triplé en fréquence ( $\lambda = 355 \text{ nm}$ ). Le faisceau laser a un profil spatial gaussien (diamètre

30  $\mu\text{m}$  à 1/e). Il délivre des impulsions de 8 ns avec un taux de répétition de 1 kHz. Pour des raisons de contrôle de commande, un tir sur cible correspond à 256 impulsions laser. Un laser Ti-Saphir pompé par diode et triplé en fréquence ( $\lambda = 288 \text{ nm}$ ) est utilisé pour ioniser la vapeur émise par la cible pendant l'endommagement. Un spectromètre de masse par mesure de temps de vol permet donc d'identifier précisément les éléments chimiques pouvant apparaître au niveau de l'échantillon pendant l'irradiation laser. Notons que les expériences décrites ici sont réalisées en tirs cumulés. En dépit de ces conditions expérimentales différentes, l'intérêt de l'étude réside dans la possibilité de mettre en évidence les différentes étapes du "pré-endommagement" dans le cas de défauts absorbants de quelques nanomètres de diamètre.

La figure 5.29 montre l'évolution du spectre ainsi mesuré en fonction des fluences d'irradiation (variant de 1.9 à 6.3  $\text{J}/\text{cm}^2$ ). Après chaque train d'impulsions un nouveau site est utilisé. Cette figure met en évidence deux domaines de fluences importants:

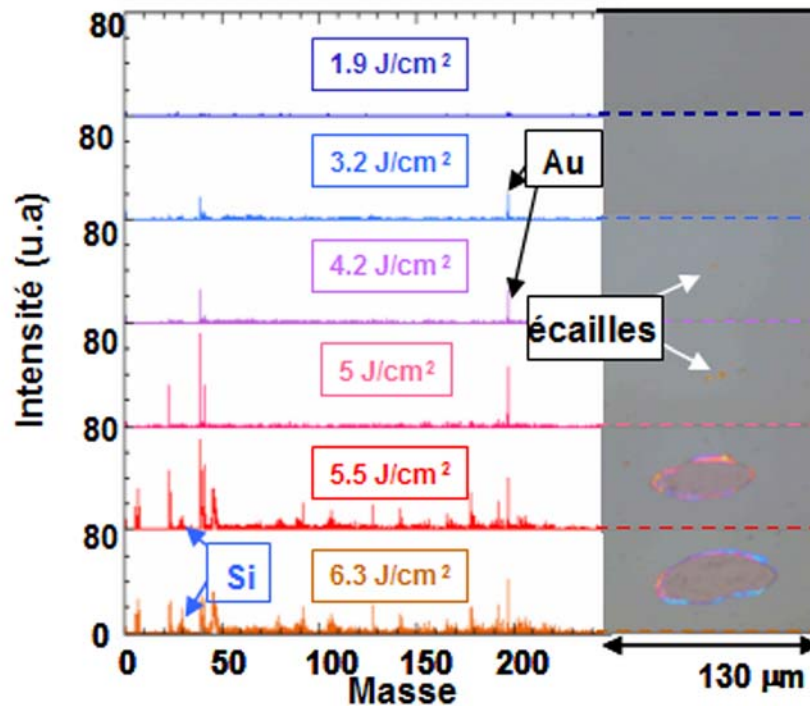


FIG. 5.29 – Spectres et images Nomarski correspondantes obtenus pour différentes fluences d'irradiation

Entre 3 et 5  $\text{J}/\text{cm}^2$ , de l'or est détecté au bout de 70 tirs environ mais aucun composé à base de silicium n'apparaît. A partir de 5.5  $\text{J}/\text{cm}^2$  le silicium et les

### 5.3. ETUDE DES MÉCANISMES DE L'ENDOMMAGEMENT LASER À L'AIDE DE DÉFAUTS MODÈLES: CAS D'INCLUSIONS MÉTALLIQUES

composés à base de silicium sont détectés dès les premiers tirs. Les images Nomarski des sites irradiés au-delà de  $5.5 \text{ J/cm}^2$  montrent une relation forte entre la détection des composés à base de silicium et un endommagement massif de la silice. Pour une fluence intermédiaire entre 4 et  $5 \text{ J/cm}^2$ , l'apparition d'or s'accompagne de quelques dommages ponctuels. A plus basse fluence (3 à  $4 \text{ J/cm}^2$ ), l'or des nano-inclusions est éjecté et détecté sans qu'aucun endommagement soit observable au microscope optique. Ce dernier résultat prouve donc qu'à basse fluence, il existe tout de même un endommagement "interne" du matériau. Cette phase de pré-endommagement est en accord avec ce qui a été évoqué précédemment même si les conditions de tirs sont différentes: l'inclusion chauffe, atteint sa température de fusion et diffuse dans la matrice de silice environnante. La vapeur d'or ainsi créée peut alors s'échapper du substrat alors qu'aucune fracture n'existe dans le matériau. Des mesures complémentaires de photothermie ont été réalisées sur ces différentes zones. Les régions n'ayant subi aucune irradiation laser présentent une absorption de l'ordre de  $10^{-5}$  ( $\sim$  bruit de mesure). Il en est de même pour les zones sur lesquelles seules des traces d'or ont été détectées. Par contre, l'étude des zones écaillées (fluence d'irradiation supérieure à  $5 \text{ J/cm}^2$ ) met en évidence une forte augmentation de l'absorption moyenne de la silice ( $A > 10^{-2}$ ). La figure 5.30 illustre ce résultat.

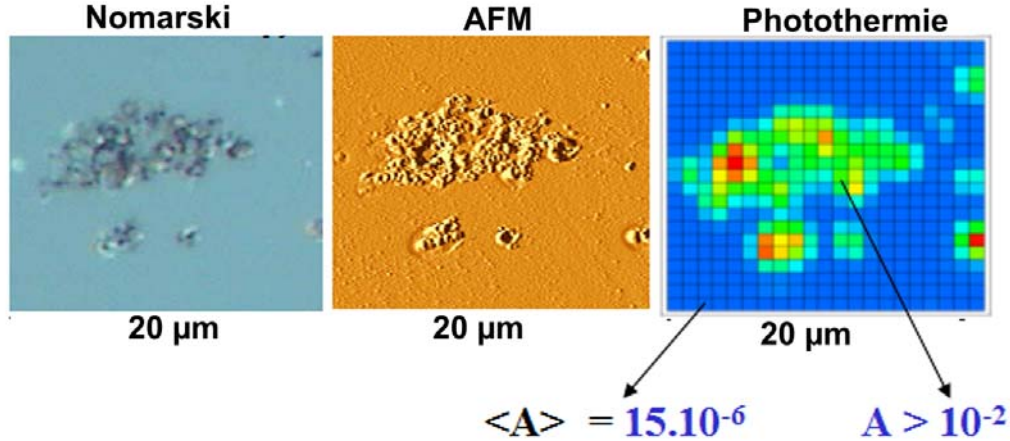


FIG. 5.30 – Images Nomarski, AFM et photothermique d'une zone endommagée (écaillage)

Ici, l'absorption de la silice dans la zone écaillée est 1000 fois supérieure à l'absorption de la silice environnante. Notons que cette augmentation est trop importante pour être liée uniquement aux variations des propriétés thermiques du matériau intrinsèque. Il s'agit plutôt ici d'une modification importante de la structure même de la silice portée à haute température durant la période d'incubation de l'or (70 tirs à la même fluence avant de détecter de l'or au spectromètre de masse). Ce résultat a, d'autre part, fait l'objet d'une étude particulière menée

entre le CEA/CESTA et le LCPMR (laboratoire de chimie physique-matière et rayonnement) [100] dans laquelle il est montré que la fusion de l'or est accompagnée de formation de siliciures très absorbants. Le résultat majeur de cette étude réside dans le fait que la silice ainsi modifiée peut devenir un matériau précurseur de l'endommagement laser pour les irradiations suivantes.

(2) *Densité de défauts modèles* = 1 def/ $\mu\text{m}^2$

Les morphologies d'endommagement observées dans le cas précédent (écaillage puis délamination de la couche de silice supérieure) sont probablement le résultat d'effets collectifs entre les inclusions d'or. Avec une densité de défauts dix fois plus faible, les effets collectifs devraient disparaître et ainsi il devrait être possible de mettre en évidence les cratères qui résultent de l'endommagement localisé du matériau au niveau des défauts modèles. Les figures 5.32 et 5.31 sont des exemples d'images Nomarski de la surface après irradiation laser. Les tirs en faisceau large (600  $\mu\text{m}$  à  $1/e^2$ ) ont été effectués sur le banc d'endommagement LUTIN ( $\lambda = 355 \text{ nm}$ ,  $\tau = 3 \text{ ns}$ ) du CEA/CESTA.

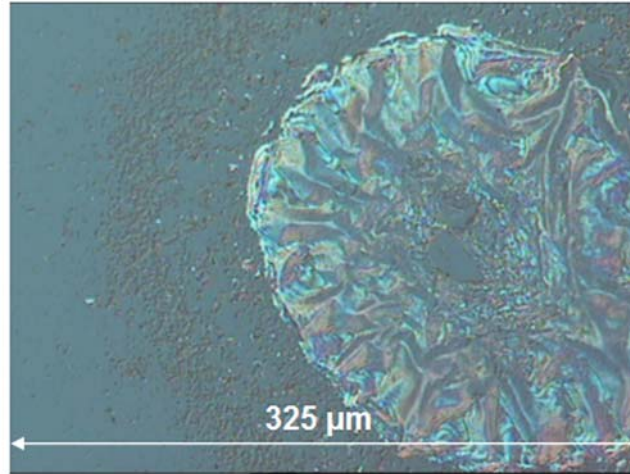


FIG. 5.31 – Image Nomarski de la surface de l'échantillon après irradiation à 23  $\text{J}/\text{cm}^2$  ( $\lambda = 355 \text{ nm}$ )

A haute fluence (23  $\text{J}/\text{cm}^2$ ), on observe une modification importante du matériau. Au centre du faisceau laser, l'importance de l'énergie déposée au cours de l'irradiation a conduit à la fusion de la silice. Par contre, à la périphérie du faisceau d'irradiation (énergie beaucoup plus faible) on observe effectivement l'apparition de cratères résultant de l'endommagement de la couche de manière localisée au niveau des défauts.

Les tirs à basse fluence (8  $\text{J}/\text{cm}^2$ ), confirment l'apparition localisée d'endom-

### 5.3. ETUDE DES MÉCANISMES DE L'ENDOMMAGEMENT LASER À L'AIDE DE DÉFAUTS MODÈLES: CAS D'INCLUSIONS MÉTALLIQUES

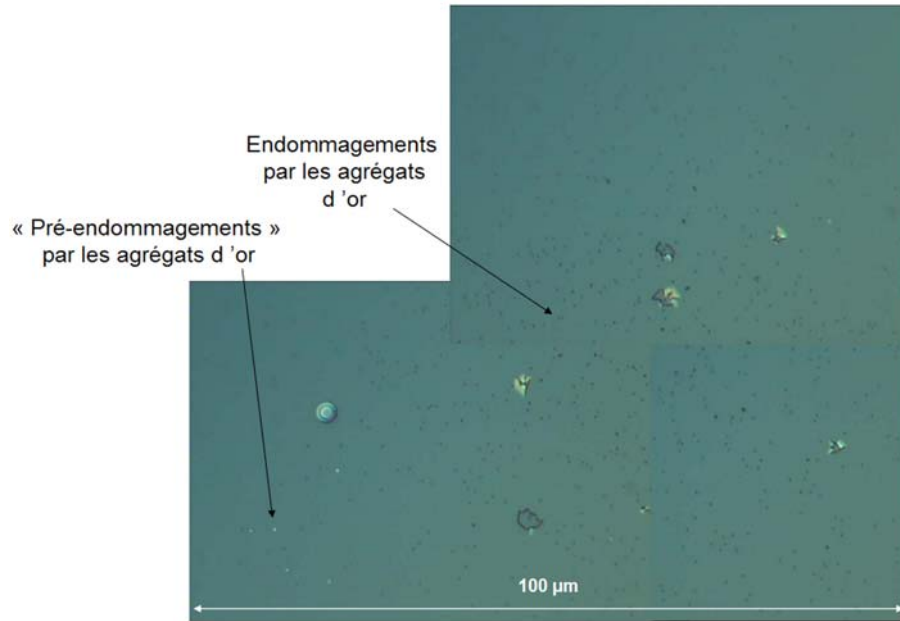


FIG. 5.32 – Images Nomarski de la surface de l'échantillon après irradiation à  $8 \text{ J/cm}^2$  ( $\lambda = 355 \text{ nm}$ )

magements au niveau des billes d'or. Pour s'assurer de la corrélation entre ces cratères et les défauts modèles présents dans le matériau, il suffit d'estimer leur densité après irradiation et de la comparer à la densité théorique des défauts modèles (tableau 5.6).

Densité de défauts	$1/\mu\text{m}^2$
Densité d'endommagements	$0.2/\mu\text{m}^2$

TAB. 5.6 – Comparaison entre la densité de défauts modèles implantés et la densité d'endommagements après irradiation.

Il semble ici que l'énergie globalement déposée au cours de l'irradiation ( $F = 8 \text{ J/cm}^2$ ) ne suffise pas pour révéler tous les défauts modèles. Ceci est d'ailleurs en accord avec le fait d'observer sur la même image (figure 5.32) des cratères dus à l'endommagement de la couche par les billes d'or mais également, des zones dans lesquelles le processus d'endommagement n'a pas complètement abouti (pré-endommagement). Une étude de cette zone par microscopie à Force Atomique (figure 5.33) montre qu'ici le pré-endommagement se caractérise par un gonflement puis une perforation de la couche de silice au niveau de la bille.

Ce résultat peut être mis en relation avec les morphologies d'endommagement enregistrées lors de l'irradiation des billes d'or de 600 nm. Des mesures photothermiques complémentaires montrent qu'au niveau de ces pré-endommagements, la

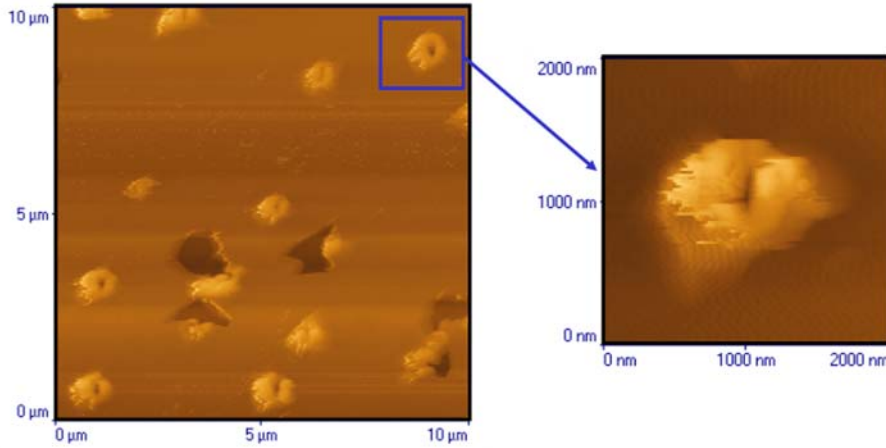


FIG. 5.33 – Cartographie AFM de la zone caractéristique du pré-endommagement de la couche de silice

silice environnante n'a pas eu le temps de se modifier ( $A \sim 10^{-5}$ ). Seules les bordures des cratères présentent une absorption significative ( $A \sim 4.10^{-5}$ ). Cependant, les valeurs d'absorption relevées ici restent très inférieures à ce qui a été mis en évidence lors de la première campagne de mesures. Cette variation de comportement trouve son origine dans les conditions expérimentales d'irradiation:

- Les inclusions métalliques ne reçoivent ici qu'une seule irradiation à une fluence donnée contre un train de 256 impulsions identiques pour la première campagne de mesures.
- La profondeur d'enfouissement des billes d'or de 3 nm est ici quatre fois plus faible que dans le premier échantillon (30 nm contre 130 nm de silice).

Dans ces conditions, le temps d'incubation de l'or porté à haute température dans la silice est nul. La matrice environnante n'a donc pas le temps de se modifier puisque l'or est directement éjecté du matériau.

## Conclusion

Le microscope photothermique n'a pas pu être utilisé pour détecter l'étape de "pré-endommagement" telle qu'elle a été mise en évidence sur les échantillons modèles contenant des billes de 600 nm et 250 nm. Néanmoins, l'utilisation d'un spectromètre de masse à temps de vol a tout de même permis d'observer une modification des inclusions d'or de 3nm pour des fluences d'irradiation inférieures au seuil d'endommagement macroscopique du composant.

Dans le cas, où les défauts sont enfouis profondément, l'endommagement macroscopique nécessite un apport d'énergie plus important. En effet, dans ce cas

l'étude montre que plusieurs tirs à la même fluence sont nécessaires pour voir apparaître des traces d'or en surface. Néanmoins, les simulations montrent que l'or peut atteindre sa température de fusion dès les premiers tirs. Ainsi la silice environnante portée à haute température a le temps de se modifier avant que le métal soit éjecté. Des mesures de photothermie des zones endommagées ont d'ailleurs montré une augmentation significative de l'absorption du matériau hôte qui devient ainsi potentiellement précurseur de l'endommagement laser.

## 5.4 Conclusion

A l'aide de défauts absorbants modèles, nous avons étudié avec précision les mécanismes d'initiation de l'endommagement laser dans les matériaux optiques. Afin de représenter au mieux l'ensemble de ces précurseurs présents en volume des composants optiques différents types d'échantillons modèles ont été utilisés: des inclusions d'or de différentes tailles ( $600\text{ nm} \rightarrow 3\text{ nm}$ ) nous ont permis de simuler aussi bien les défauts "extrinsèques" présents dans les empilements diélectriques (nodules) que les défauts "intrinsèques" responsables de l'endommagement dans les matériaux ultra-pures.

Le couplage in-situ d'un laser d'irradiation et d'un diagnostic fin de photothermie nous a permis de suivre l'évolution de ces défauts et du matériau hôte en fonction de la densité d'énergie appliquée. La comparaison des résultats expérimentaux aux données théoriques de l'interaction laser-matière a conduit à la mise en évidence de mécanismes précis dans l'initiation de l'endommagement:

- (1) Dans tous les cas, la présence de ces contaminants modèles fait chuter la tenue au flux des composants testés et les dommages apparaissent en priorité au niveau de ces défauts. Par conséquent, l'implication de ces inclusions absorbantes dans le mécanisme de claquage est clairement démontré ici.
- (2) Il a été démontré, dans le cas des billes d'or de  $600\text{ nm}$ , que lorsque la fluence d'irradiation atteint le seuil d'endommagement, le défaut peut se vaporiser et les pressions exercées sur la silice environnante sont telles que des fractures peuvent apparaître. Ceci constitue vraisemblablement la première étape de l'endommagement macroscopique.

Néanmoins, pour des inclusions de  $3\text{ nm}$  en grande densité et suffisamment enfouies, les pressions ne sont pas suffisantes pour que le défaut soit éjecté dès le premier tir. Le métal porté à haute température reste alors confiné dans le matériau hôte pendant un certain nombre de tirs. Ce temps d'incubation apparaît alors suffisant pour transformer de manière irréversible la matrice environnante. La silice devient alors fortement absorbante et joue le rôle de précurseur de l'endommagement laser pour les tirs suivants. Il serait



intéressant à ce stade de mettre en évidence cette modification potentielle par des études physico-chimiques. Dans ce contexte, des mesures de fluorescence du matériau irradié sont en cours de développement au laboratoire.

- **(3)** Lors d'irradiations à très basses fluences, on retrouve le même comportement pour toutes les tailles de défauts modèles. Alors qu'aucun endommagement n'est détectable en surface, une investigation fine par photothermie ou par spectroscopie de masse montre que l'inclusion commence à se modifier dès que la fluence d'irradiation permet au métal d'atteindre sa température de fusion. Cette étape de "pré-endommagement" semble donc constituer un résultat majeur pour la compréhension et la maîtrise des mécanismes de l'endommagement laser.

En effet, l'étude développée ici valide l'hypothèse selon laquelle une pré-irradiation sous seuil d'endommagement d'un défaut précurseur permet de l'éliminer sans endommager le matériau hôte. Une étude en cours de réalisation par S. Palmier au CEA/CESTA sur les contaminants métalliques de surface montre que l'élimination de ces centres précurseurs par irradiation laser s'accompagne d'une amélioration significative de la tenue au flux du composant. Ce dernier résultat constitue donc une avancée majeure en vue d'un conditionnement laser des composants optiques utilisés dans les lasers de puissance.



## Chapitre 6

# Vers le conditionnement laser des matériaux optiques

Les études précédentes ont permis d'étudier l'origine des défauts précurseurs de l'endommagement dans les matériaux optiques ainsi que leurs modes d'interaction avec le faisceau laser incident. Nous cherchons maintenant à développer des techniques permettant d'éliminer par pré-irradiation ces défauts initiateurs de différentes tailles (intrinsèques et extrinsèques) réellement présents dans les composants optiques afin d'en améliorer leur tenue au flux. Ceci constitue le conditionnement laser.

Nous présentons tout d'abord un état de l'art et une étude des phénomènes de fatigue pouvant apparaître au niveau d'un matériau optique soumis à des tirs répétés sous seuil d'endommagement. Nous nous intéressons ensuite aux techniques de conditionnement laser des matériaux: après une étude bibliographique, nous définissons des protocoles de pré-irradiation afin d'améliorer la tenue au flux laser UV de la silice et du KDP.

## 6.1 Introduction

Lors de l'irradiation laser des matériaux optiques en tirs répétés et sous seuil d'endommagement, deux phénomènes opposés peuvent apparaître. Généralement l'accumulation de tirs à une fluence inférieure au seuil d'endommagement mesuré en mono-coup conduit, au bout d'un certain temps, à l'apparition de dommages dans la zone irradiée. Cette diminution du seuil d'endommagement laser peut s'interpréter comme une "fatigue" du matériau. Dans certains cas par contre, il est possible d'observer le phénomène inverse, à savoir une augmentation significative du seuil d'endommagement. Tout se passe alors comme si la succession de tirs à faible fluence améliorerait la tenue au flux laser du matériau. Ce dernier phénomène porte alors le nom de "conditionnement laser". Nous avons vu au chapitre 3, que l'endommagement laser dans les composants optiques est étroitement lié à la présence de défauts appelés "centres précurseurs". Par conséquent, il est possible d'interpréter ces deux phénomènes antagonistes d'un point de vue microscopique comme une création ou une élimination de défauts responsables du claquage du matériau.

## 6.2 Fatigue des matériaux optiques sous tirs lasers répétés

### 6.2.1 État de l'Art

#### **Diminution de la tenue au flux laser de différents matériaux optiques soumis à des tirs multiples**

Le phénomène de "fatigue" a été observé et quantifié dans des matériaux aussi différents que les polymères [108], les cristaux [109–111], les empilements de couches diélectriques [110, 112] ou métalliques [111] et plus généralement dans les verres [24, 107, 113]. Les valeurs des seuils d'endommagement ainsi mesurés sont résumées dans le tableau 6.1. On observe une fragilisation du matériau pouvant faire chuter le seuil d'endommagement laser de plus de 70% dans le pire des cas. Ce résultat impose de redéfinir la tenue au flux laser des composants optiques dans le cas de tirs répétés. Ces quelques exemples montrent que la donnée du seuil d'endommagement en mono-coup ne suffit pas pour assurer le bon fonctionnement d'un composant optique sollicité par des tirs multiples et proches dans le temps. Ce problème de "fatigue" devient critique dans le cas des lasers fonctionnant à haute fréquence (100 Hz et plus). Ainsi pour caractériser au mieux un composant optique en terme de tenue au flux, il est nécessaire de prendre en compte les paramètres d'utilisation tels que la longueur d'onde, la fréquence de répétition et le nombre d'irradiations successives reçues en routine par l'optique considérée.

Matériau testé	$\lambda$	$S_N / S_1$
Silice (volume) [107]	1064 nm	0.8 (N=10) $\rightarrow$ 0.6 (N=1000)
Silice (volume) [25]	355 nm	0.7 (N=10 <sup>3</sup> )
BK7 (volume) [107]	1064 nm	0.9 (N=10) $\rightarrow$ 0.5 (N=1000)
cristal Mo (surface) [111]	1064 nm	0.8 (N=10) $\rightarrow$ 0.3 (N=10 <sup>5</sup> )
HfO <sub>2</sub> /SiO <sub>2</sub> [112]	248 nm	0.3 (N=10 <sup>4</sup> )
KDP (vide 10 <sup>-5</sup> Torr) [110]	351 nm	0.8 (N=10 <sup>3</sup> )

TAB. 6.1 – *Evolution du seuil d'endommagement ( $S_N$ ) de différents matériaux après  $N$  tirs lasers. Les valeurs sont comparées au seuil mesuré sous tir unique ( $S_1$ )*

### Mécanismes impliqués dans les phénomènes de "fatigue"

Plusieurs mécanismes ont été proposés afin d'expliquer ces phénomènes de fatigue dans les composants optiques. Une synthèse des différents phénomènes mis en jeu a été publiée en 1997 par A.E. Chmel [32]. La fatigue des composants optiques soumis à des tirs lasers successifs semble être liée à un "effet mémoire" du matériau: l'action de chaque tir laser dépendrait des précédents. Pour valider cette hypothèse, une approche statistique du phénomène est développée. En faisant l'hypothèse que chaque tir est indépendant, la probabilité d'endommager un site au bout de  $N$  tirs serait donc donnée par:

$$p(N) = (1 - P_1)^{(N-1)} \cdot P_1 \quad (6.1)$$

où  $P_1$  représente la probabilité d'endommagement en mono-coup.

Or Merkle et al. [24] ont montré expérimentalement que dans le cas de la silice, la probabilité d'endommagement après  $N$  tirs suit non pas une loi binomiale (equation 6.1) mais plutôt une loi de Poisson. Dans ces conditions, il apparaît que les  $N$  tirs ne sont pas indépendants. Chaque impulsion laser modifie le matériau même si aucun endommagement n'est visible en surface. Notons que ceci est en accord avec les résultats obtenus sur les défauts modèles (chapitre 5). D'une part, nous avons mis en avant des modifications au niveau du défaut irradié bien avant l'endommagement macroscopique du composant (étape de pré-endommagement) et d'autre part nous avons également montré que l'accumulation de tirs à basse fluence avait une réelle influence sur l'évolution du défaut modèle.

D'un point de vue microscopique, la fragilisation du matériau peut être vue comme la révélation ou la création de nouveaux centres précurseurs de l'endommagement laser durant les  $(N-1)$  premiers tirs. Suivant les conditions d'irradiation (longueur d'onde, fréquence de répétition du laser), plusieurs mécanismes peuvent

alors être en compétition:

– **Création de centres colorés:**

Ces défauts structurels de natures différentes suivant la longueur d'onde d'excitation [40], peuvent apparaître au cours de l'utilisation du composant. Nous pouvons par exemple citer des liaisons inter-atomiques pendantes (centres E') ou encore des atomes d'oxygène en excès (NBOHC). La présence de ces défauts de structure engendre une augmentation de l'absorption optique du matériau (d'où le nom de centres colorés). Lors des tirs suivants, on peut alors assister à un échauffement plus important de la matière pouvant aboutir au claquage macroscopique du composant du fait de l'importance des contraintes thermo-mécaniques ainsi créées. La particularité de ces défauts est leur durée de vie limitée (de quelques millisecondes à quelques secondes). Ainsi selon la durée de l'impulsion et la fréquence de répétition, ces défauts pourront être considérés comme précurseurs de l'endommagement laser dans le cas où ils n'ont pas le temps de relaxer. De nombreux travaux ont été publiés à ce sujet [42, 114–118].

– **Création de contraintes mécaniques:**

Dans le cas d'une irradiation en tirs répétés de la silice réalisée dans l'Infrarouge, la création de défauts de type "centres colorés" semble peu probable d'après les données bibliographiques [40]. Dans cette gamme de longueurs d'onde, la fragilisation du matériau semble être liée à des contraintes mécaniques induites par l'irradiation. Kubota et al. [119] ont publié à ce sujet un article sur la densification de la silice lors d'irradiations lasers successives. Leurs simulations numériques montrent en particulier que l'onde de choc induite par le faisceau laser incident est suffisante pour compacter la silice en surface. Les contraintes ainsi créées persistent encore après la dissipation de l'onde choc et par conséquent peuvent fragiliser le matériau pour les tirs suivants. D'autres travaux mettent également en avant le problème de fragilisation du matériau lié à sa densification lors d'irradiations laser intenses. Nous pouvons citer par exemple les travaux de Liberman et al. [120] visant à relier la densification de la silice à sa tenue au flux laser en tirs répétés. Notons à ce niveau que les contraintes mécaniques pouvant apparaître lors de la densification du matériau peuvent également influencer de façon irréversible sur les caractéristiques optiques des composants irradiés. Ainsi, divers travaux [121, 122] associent expérimentalement la densification de la silice à l'apparition d'aberrations géométriques dans le faisceau laser transmis.

– **Révélation de défauts intrinsèques ou extrinsèques:**

Au regard des résultats obtenus dans les chapitres précédents, il est possible d'imaginer que l'accumulation de tirs à basse fluence puisse révéler des centres précurseurs de l'endommagement laser déjà présents dans le matériau. Nous avons par exemple montré que la présence d'inclusions absorbantes de taille nanométrique pouvait modifier de façon irréversible le matériau hôte. La succession de tirs a pour conséquence une modification de la silice environnante. L'apparition de siliciures rend le matériau fortement absorbant [100] et le transforme pour les tirs suivants en précurseur de l'endommagement laser. Ce mécanisme a donc pour conséquence une fragilisation du composant optique.

### 6.2.2 Etude de l'évolution de la tenue au flux laser de la silice sous tirs répétés

Nous présentons ici une étude exhaustive de l'endommagement d'une lame de silice Suprasil soumise à une succession de tirs lasers. L'influence de la zone d'irradiation (surface, volume), de la longueur d'onde, du nombre de tirs successifs mais également de la fréquence de répétition sont traitées en détail.

#### Procédures de test

L'effet de fatigue du matériau dû aux tirs répétés peut être mis en évidence par deux procédures de test définies au chapitre 2 (R:1 et S:1). Dans notre cas, la procédure R:1 n'est pas adaptée puisqu'elle fait intervenir plusieurs effets simultanément. L'effet du nombre de tirs et l'effet de la rampe d'énergie ne peuvent pas être décorréllés. Nous utilisons donc la procédure S:1 qui permet de s'intéresser exclusivement à l'effet du nombre de tirs successifs. On note alors  $P(N)$  la probabilité d'endommagement du matériau au bout de  $N$  tirs. Le calcul de cette probabilité d'endommagement  $P(N)$  s'effectue de la façon suivante: On associe à chaque site testé (50 pour une fluence donnée) la valeur "0" si le matériau ne s'est pas endommagé au bout des  $N$  tirs et la valeur "1" si un endommagement est apparu au bout d'un nombre de tirs inférieur ou égal à  $N$ . L'ajustement théorique des courbes de probabilité d'endommagement à partir du modèle statistique présenté au chapitre 3, nous permet également de suivre l'évolution de la densité des centres précurseurs et de leur seuil d'endommagement en fonction du nombre de tirs. Ce modèle, au départ basé sur l'hypothèse d'irradiation unique d'un site, peut être transposé au cas S:1. Pour cela, il suffit de supposer que les  $N-1$  premiers tirs révèlent un défaut et le  $N$ -ième tir sur ce centre précurseur provoque alors l'endommagement.

## Résultats expérimentaux obtenus en surface et en volume

Cas du volume:

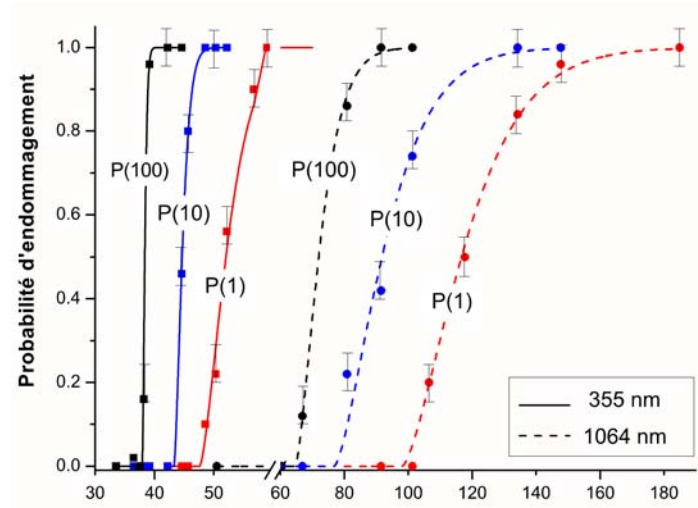


FIG. 6.1 – Probabilité d'endommagement après 1,10 et 100 tirs en volume de la silice à 1064 nm et 355 nm. (fréquence = 10 Hz)

La figure 6.1 représente les courbes de probabilité d'endommagement obtenues en volume d'un échantillon de silice Suprasil aux deux longueurs d'onde d'étude (355 nm et 1064 nm) après 1, 10 et 100 tirs successifs (fréquence = 10 Hz). Pour les deux longueurs d'onde, on observe une forte décroissance du seuil bas d'endommagement lorsque le nombre de tirs augmente. Expérimentalement ceci se traduit par un décalage des courbes de probabilité d'endommagement vers les basses fluences. Ce résultat révèle une fatigue systématique du matériau lorsqu'il est soumis à une succession de tirs lasers. Après 100 tirs, la valeur du seuil bas diminue de 35 % dans le cas d'une irradiation à 1064 nm et de 20 % à 355 nm. D'après le modèle présenté au chapitre 3, nous avons vu que l'analyse des pentes des courbes de probabilité d'endommagement permet d'avoir accès à la densité des défauts précurseurs de l'endommagement laser du matériau. La comparaison des pentes obtenues ici met en évidence d'importantes différences de comportement suivant la longueur d'onde d'irradiation. La figure 6.2 est une illustration de l'évolution de la densité de défauts présents en volume du matériau en fonction du nombre de tirs et de la longueur d'onde.

Dans le cas d'une irradiation à 1064 nm, on remarque que la densité des centres précurseurs n'évolue quasiment pas avec le nombre de tirs. Ce résultat a déjà été observé par Gallais et al. [107]. Ceci indique qu'à 1064 nm, le processus d'endommagement sous tirs répétés ne crée pas de défauts supplémentaires mais



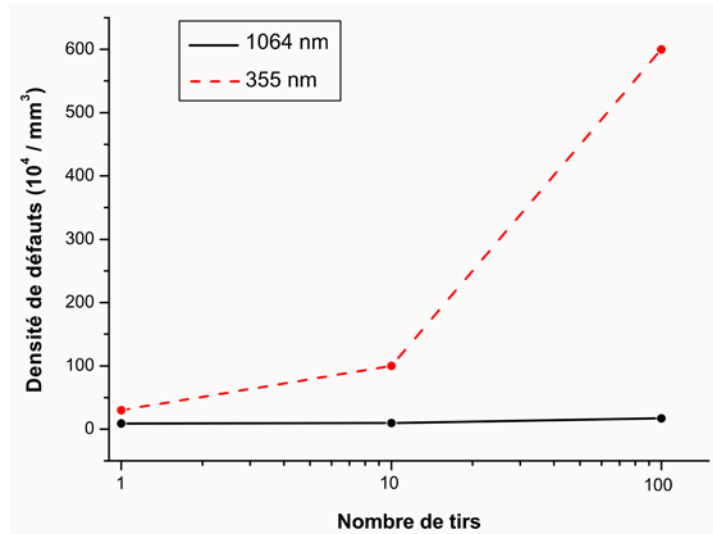


FIG. 6.2 – *Evolution de la densité de défauts précurseurs de l'endommagement laser en fonction du nombre de tirs et de la longueur d'onde d'irradiation. Les valeurs représentées ici sont déduites de l'ajustement théorique réalisé sur les courbes de probabilité d'endommagement.*

diminue le seuil de tenue au flux des défauts existants. Lors d'une irradiation à 355 nm, l'évolution de la densité de centres précurseurs en fonction du nombre de tirs est radicalement différente. Expérimentalement, les courbes évoluent fortement avec l'accumulation de tirs lasers ce qui se traduit par l'apparition de pentes abruptes. Du point de vue du modèle statistique basé sur la probabilité de présence d'un précurseur sous le faisceau, ceci doit correspondre à une augmentation significative du nombre de centres précurseurs de l'endommagement laser. Une augmentation d'un facteur 20 est ici mise en évidence. Notons que cette augmentation de la densité des centres précurseurs sous tirs répétés dans l'UV peut s'expliquer par la création d'un nouveau type de centres précurseurs de l'endommagement laser. L'étude bibliographique précédente montre en effet qu'il est possible dans nos conditions expérimentales de créer sous irradiation lasers des défauts de type "centres colorés".

### Cas de la surface:

Une étude similaire a été effectuée en surface. Les données relatives à l'évolution des centres précurseurs de l'endommagement laser de surface (seuil bas d'endommagement et densité) sous irradiations multiples sont représentées sur la figure 6.3.

Les résultats obtenus à 1064 nm sur la face avant de silice Suprasil mettent en avant une décroissance d'environ 50% du seuil bas d'endommagement lorsque

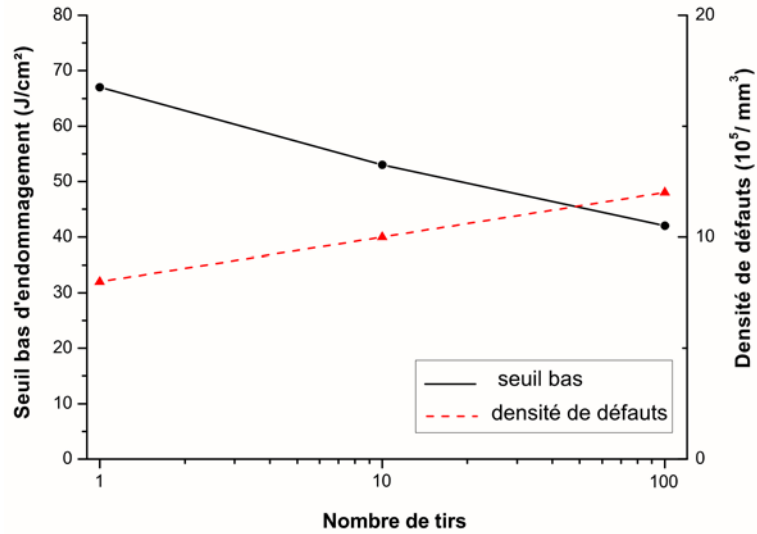


FIG. 6.3 – Evolution du seuil bas d'endommagement laser et de la densité de précurseurs en surface d'un verre de silice lors d'une irradiation en tirs répétés à 1064 nm

le nombre de tirs passe de 1 à 100. Ces données expérimentales révèlent, comme dans le cas du volume, un phénomène de "fatigue" du matériau lorsque ce dernier est soumis à des tirs lasers répétés. En ce qui concerne l'évolution de la densité de défauts, une très faible augmentation ( $\sim x2$ ) peut être notée. Le comportement global du matériau vis à vis des tirs répétés est similaire à celui mis en évidence dans le cas du volume. Ainsi à cette longueur d'onde, il semble que le même type de défauts soit à l'origine du processus d'endommagement lors d'une irradiation en tir unique (1:1) ou en tirs répétés (S:1).

Dans le cas d'irradiations à 355 nm, les résultats expérimentaux révèlent une différence notable de comportement entre le processus d'endommagement sous irradiations multiples du volume (figure 6.1) et de la surface (figure 6.4). Dans le cas surfacique, aucune modification significative du seuil bas d'endommagement n'est mesurée entre 1 et 10 tirs successifs. Pour les tirs suivants (jusqu'à 100) une faible décroissance de l'ordre de 10% apparaît. En ce qui concerne l'évolution de la densité de centres précurseurs en fonction du nombre de tirs, une faible augmentation est observée ( $\sim x2$ ). Pour comparaison, notons que cette valeur est environ 10 fois plus faible que dans le cas des endommagements de volume. Par conséquent, l'important effet de "fatigue" observé dans le volume, ne se manifeste pas dans le cas de l'irradiation en tirs répétés de la surface à 355 nm. Ce phénomène est en accord avec les résultats relatifs au conditionnement de la surface des optiques en silice. La pré-irradiation laser UV sous seuil d'endommagement est en effet utilisée pour améliorer la tenue au flux des composants optiques [123].

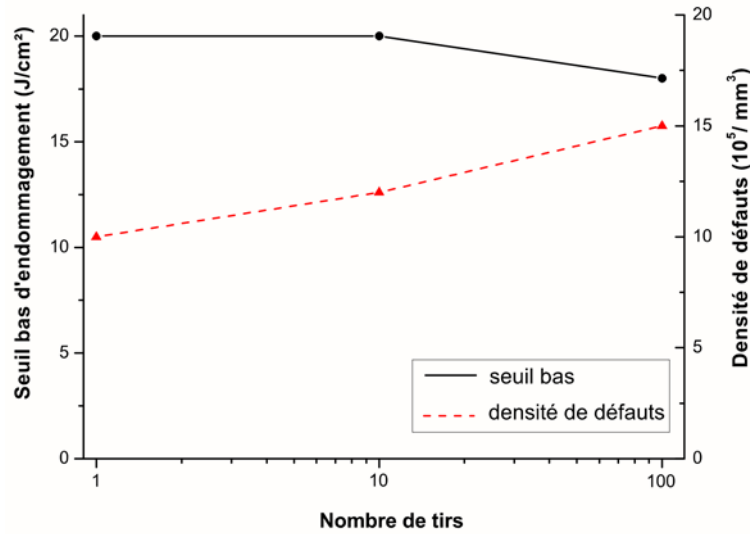


FIG. 6.4 – Evolution du seuil bas d'endommagement laser et de la densité de précurseurs en surface d'un verre de silice lors d'une irradiation en tirs répétés à 355 nm

### Durée de vie des optiques

Nous venons de voir que la sollicitation d'une optique en tirs répétés avait pour conséquence une fragilisation quasi-certaine du matériau. Excepté, lors d'une irradiation dans l'UV (355 nm) de la surface, l'accumulation de tirs lasers à faible fluence semble toujours se traduire par l'endommagement irréversible du matériau. Ce phénomène pose donc la question de la durée de vie des optiques utilisées pour guider et mettre en forme le faisceau dans les lasers de puissance utilisés avec de forts taux de répétition. Il est primordial que l'utilisateur connaisse avec précision le nombre maximum d'impulsions laser qu'il peut obtenir à une fréquence donnée avant d'effectuer la maintenance et le remplacement des divers éléments optiques.

La figure 6.5 représente l'évolution du seuil bas d'endommagement (surface et volume) d'un verre de silice en fonction du nombre d'irradiations successives à 1064 nm. Afin de se rapprocher de l'utilisation réelle des lasers de puissance, nous avons augmenté le nombre d'impulsions successives jusqu'à  $10^5$ . Ce chiffre reste encore très éloigné du nombre de tirs réalisés par des lasers qui ont généralement un fort taux de répétition et qui sont utilisés pendant des durées relativement longues. Expérimentalement, nous sommes limités par la fréquence maximale de tir de nos lasers de test (10 Hz). Néanmoins, cette étude, nous permet de déduire des tendances d'évolution quant à la durée de vie des optiques après quelques millions de tirs lasers. A cette longueur d'onde ( $\lambda = 1064$  nm), le volume et la surface se comportent de façon similaire. Deux régions distinctes sont clairement

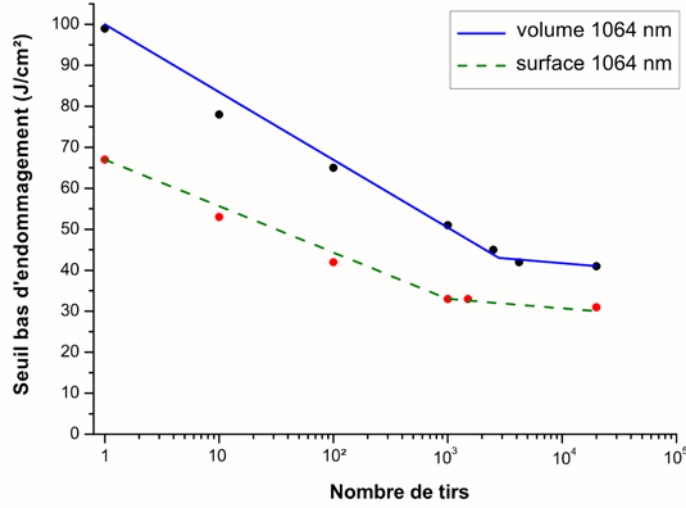


FIG. 6.5 – Evolution du seuil bas d'endommagement en surface et en volume lors d'une irradiation en tirs répétés à 1064 nm (fréquence de répétition fixée à 10 Hz)

identifiables sur la courbe donnant l'évolution du seuil bas en fonction du nombre de tirs:

- Pour les 1000 premiers tirs, nous pouvons noter une décroissance importante du seuil bas d'endommagement. Expérimentalement cette décroissance peut être décrite par une loi logarithmique. Cette dépendance en  $\ln(N)$  a déjà été mise en évidence ([107, 111]). Les équations 6.2 et 6.3 décrivent ces lois d'évolution dans le cas des endommagements de volume et de surface.

$$S(N)_{volume}^{1064nm} = -6.8 \ln(N) + 96 \quad (6.2)$$

$$S(N)_{surface}^{1064nm} = -4.9 \ln(N) + 65 \quad (6.3)$$

- Pour un nombre de tirs successifs supérieur à  $10^3$ , on assiste ensuite à une stabilisation du seuil bas d'endommagement. Il semblerait qu'au-dessous d'une fluence limite, le matériau ne soit plus affecté par la répétition de tirs lasers. L'énergie déposée n'est plus suffisante pour engendrer la modification du matériau. Expérimentalement, cette valeur correspond approximativement à 50% du seuil bas d'endommagement mesuré en mono-coup (procédure de test 1:1). La connaissance de cette valeur de stabilisation permet ainsi de définir un seuil d'endommagement fonctionnel en tirs répétés en dessous duquel, l'utilisateur peut faire fonctionner un laser de puissance IR sans risquer d'endommager les composants optiques en silice.

Les mêmes mesures réalisées à 355 nm (figure 6.6) montrent que l'évolution du seuil bas d'endommagement en fonction du nombre de tirs successifs est très différente suivant la localisation de la zone de test (surface ou volume).

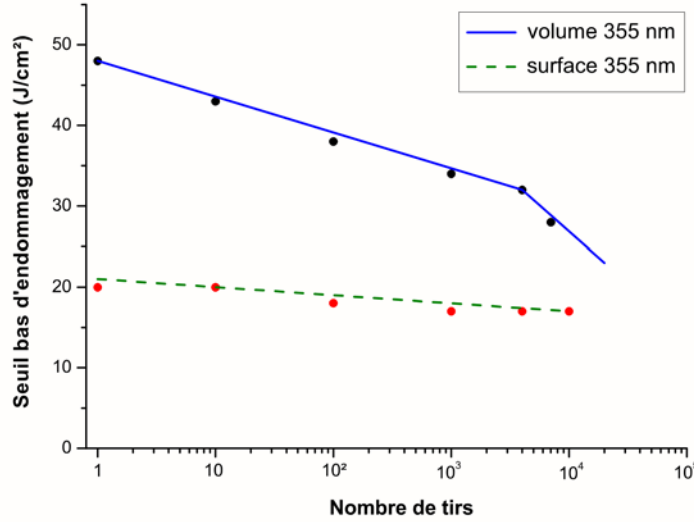


FIG. 6.6 – Evolution du seuil bas d'endommagement en surface et en volume lors d'une irradiation en tirs répétés à 355 nm (fréquence de répétition fixée à 10 Hz)

Dans le cas de l'endommagement du matériau volumique, nous pouvons mettre en évidence une première décroissance du seuil bas d'endommagement pour un nombre de tirs successifs allant jusqu'à  $10^4$ . Comme précédemment ( $\lambda = 1064$  nm), cette décroissance du seuil bas d'endommagement peut être décrite par une loi logarithmique (équation 6.4).

$$S(N)_{\text{volume}}^{355\text{nm}} = -2Ln(N) + 48 \quad (6.4)$$

Une rupture de pente dans l'évolution du seuil bas d'endommagement est mise en évidence lorsque le nombre de tirs continue à augmenter ( $N \sim 10^4$ ). Du fait du faible taux de répétition de notre laser d'irradiation (10 Hz), nous n'avons pas pu aller au delà de  $10^4$  tirs pour confirmer cette évolution. Néanmoins, cette chute du seuil bas d'endommagement pour  $10^4$  tirs est tout d'abord répétable mais également significative par rapport aux erreurs de mesures éventuelles. Ceci peut s'expliquer soit par la création d'un nouveau type de défauts avec un seuil de claquage plus bas, soit par l'existence d'effets collectifs dus à une augmentation significative de la densité de centres précurseurs de l'endommagement laser dans le matériau. Il serait intéressant de poursuivre l'étude afin confirmer ce comportement pour un plus grand nombre de tirs successifs. Pour cela, l'utilisation d'un laser UV à haute fréquence de répétition ( $f > 100$  Hz) est nécessaire.

Dans le cas d'endommagements de surface, l'effet des tirs cumulés est très faible pour les 1000 premiers tirs. Néanmoins, comme dans les cas précédents, il est possible de caractériser cette décroissance du seuil bas (environ 15 %) à l'aide d'une loi logarithmique (équation 6.5).

$$S(N)_{surface}^{355nm} = -0.5Ln(N) + 20 \quad (6.5)$$

Pour un nombre de tirs successifs plus important, le seuil bas d'endommagement devient quasiment constant (autour de  $18 J/cm^2$ ). Ceci signifie donc qu'à cette longueur d'onde ( $\lambda = 355$  nm) la surface n'est pas affectée par l'accumulation de tirs à basse fluence.

Notons que le procédé de test utilisé ici (S:1) permet de mettre en évidence uniquement la fatigue du matériau. Lorsqu'aucun effet de fatigue n'apparaît, il est tout de même impossible de conclure à l'existence ou non d'une amélioration de la tenue au flux par pré-irradiations. Le conditionnement laser observé dans la silice à 355 nm est donc compatible avec ces résultats [123].

### Effet de la fréquence de répétition sur le seuil d'endommagement

Nous étudions maintenant l'influence de la fréquence de répétition sur la fragilisation du matériau. Pour cela, nous avons restreint l'étude au cas de l'endommagement de volume aux deux longueurs d'onde (1064 nm et 355 nm) et pour des fréquences allant de 10 Hz à  $10^{-2}$  Hz. Expérimentalement, l'influence de la fréquence de répétition est obtenue en mesurant la probabilité d'endommagement après 10 tirs à différentes fréquences. La fluence d'irradiation correspond au seuil bas d'endommagement mesuré en mode 1:1. La figure 6.7 illustre ces résultats.

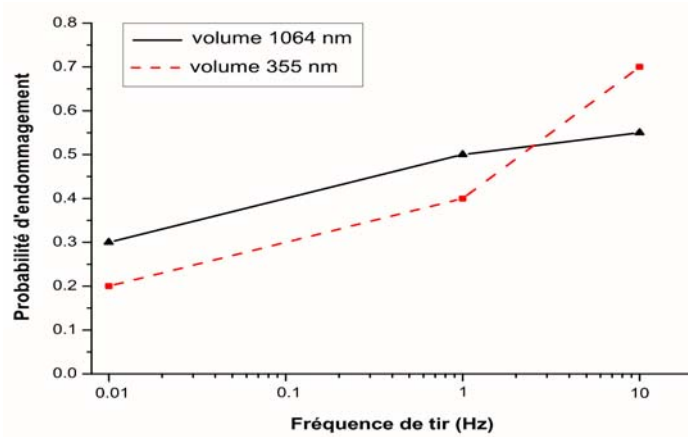


FIG. 6.7 – Influence de la fréquence de répétition sur la probabilité d'endommagement après 10 tirs en volume (la fluence d'irradiation correspond au seuil bas d'endommagement mesuré en 1:1)

La diminution de la fréquence de répétition a pour conséquence une baisse de la probabilité d'endommagement aussi bien à 1064 nm qu'à 355 nm. Ce résultat montre que la "fatigue" du matériau dépend non seulement du nombre de tirs mais également de l'intervalle de temps entre chaque irradiation. La prise en compte de ces deux paramètres est donc indispensable lors de l'estimation de la durée de vie d'un composant optique d'un laser de puissance. A titre d'exemple, notons que l'utilisation d'une fréquence de répétition aussi basse que  $10^{-2}$  Hz (100 secondes entre chaque tir) ne permet pas d'atteindre le comportement du matériau sous irradiation laser unique. L'effet mémoire évoqué par Chmel [32] est ici mis en évidence.

Dans le cas d'une irradiation à 355 nm, l'effet de fréquence s'accroît entre 1 et 10 Hz, corroborant ainsi l'hypothèse selon laquelle l'accumulation de tirs lasers UV favorise la création de centres colorés dans la silice et les effets collectifs qui peuvent en découler. L'ensemble de ces résultats permet également de mettre en avant le caractère réversible de ces centres précurseurs de l'endommagement laser. Il est en effet possible de définir un "temps de relaxation" et donc une fréquence de tir à ne pas dépasser pour conserver l'intégrité du composant optique.

### 6.2.3 Evolution de la tenue au flux laser du KDP sous tirs répétés

Au même titre que pour l'étude précédente sur l'endommagement de la silice sous tirs lasers répétés, nous avons étudié le comportement de cristaux de KDP soumis à des irradiations cumulées. Pour cela, nous étudions en détail l'influence de la longueur d'onde d'irradiation et de la fréquence de répétition sur la tenue au flux volumique des cristaux de KDP. Notons que l'étude de l'endommagement laser de surface n'a pas été réalisée à cause du fort caractère hygroscopique de ces cristaux. En effet, le test de ces composants dans une atmosphère non contrôlée en terme d'humidité a pour conséquence une pollution de la surface, ce qui se traduit par des résultats difficiles à interpréter.

#### Influence du nombre de tirs sur la durée de vie des optiques

La figure 6.8 représente l'évolution du seuil bas d'endommagement en volume en fonction du nombre d'irradiations successives à 1064 nm et 355 nm. La fréquence de répétition du laser est fixée à 10 Hz. Les résultats expérimentaux attestent d'une différence de comportement significative en fonction de la longueur d'onde d'irradiation.

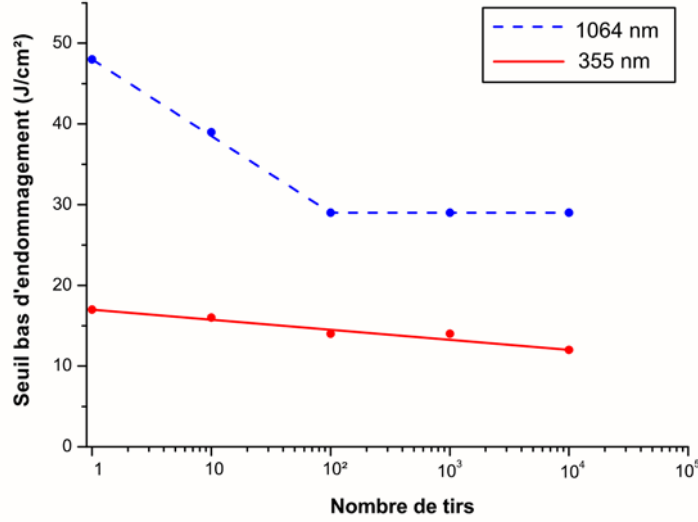


FIG. 6.8 – Evolution du seuil bas d'endommagement volumique en fonction du nombre de tirs à 1064 nm et 355 nm (fréquence de répétition fixée à 10 Hz)

- Lors d'une irradiation à 1064 nm, on retrouve pour le KDP des résultats comparables à ceux mis en évidence dans le cas de la silice. On assiste tout d'abord à une décroissance importante du seuil bas d'endommagement lors des 100 premiers tirs. L'équation 6.6 illustre cette évolution.

$$S(N)_{volume}^{1064nm} = -3.4Ln(N) + 46 \quad (6.6)$$

On observe ensuite une stabilisation du seuil de claquage pour les tirs suivants. En dessous de cette fluence limite, le matériau n'est plus affecté par l'accumulation de tirs. Comme pour la silice, ceci permet à l'utilisateur de définir un seuil d'endommagement fonctionnel de son cristal le mettant ainsi à l'abri de tout endommagement.

- A 355 nm, l'effet des tirs cumulés sur la tenue au flux laser volumique du KDP est quasiment nul. L'équation 6.7 atteste de ce comportement.

$$S(N)_{volume}^{355nm} = -0.5Ln(N) + 17 \quad (6.7)$$

Ce résultat n'est pas surprenant puisque le KDP est un matériau sur lequel l'effet d'un conditionnement laser à 355 nm a été prouvé.

### Effet de la fréquence de répétition sur le seuil d'endommagement

Les résultats précédents montrent qu'à 10 Hz, la succession de tirs UV sous seuil d'endommagement ne fragilise pas le matériau. Afin de compléter ceci, une



étude paramétrique sur la fréquence de répétition a été réalisée sur un principe identique à celui décrit dans le cas de la silice. Le tableau 6.2 regroupe les résultats obtenus pour des fréquences de tirs comprises entre 0.1 Hz et 10 Hz.

fréquence	Probabilité d'endommagement
10 Hz	0.7
1 Hz	0.6
0.1 Hz	0.6

TAB. 6.2 – *Evolution de la probabilité d'endommagement en volume après 10 tirs en fonction de la fréquence d'irradiation ( $\lambda = 355 \text{ nm}$ )*

Contrairement à ce que nous avons décrit précédemment pour la silice, le comportement du KDP apparaît constant dans cette gamme de fréquences. Cela signifie que, même si des défauts sont créés au cours de l'irradiation, leur durée de vie est telle qu'ils ne jouent pas le rôle de centres précurseurs pour les tirs suivants. Ces résultats nécessitent d'être confirmés en étudiant, par exemple, le comportement du KDP à plus haute fréquence.

### 6.2.4 Bilan

L'étude présentée ici sur la fatigue des matériaux optiques soumis à des irradiations laser répétées a permis de mettre en évidence différents types de comportements suivant la nature du composant testé, la localisation du test (surface, volume), la longueur d'onde d'irradiation ou encore la fréquence de répétition du laser.

– **Silice Suprasil:**

De manière générale, l'accumulation de tirs lasers à basse fluence (inférieure au seuil d'endommagement mesuré en mono-coup) fragilise le matériau. Ainsi le seuil bas d'endommagement, fluence au-dessus de laquelle l'apparition de dommages est possible, diminue avec le nombre de tirs. Expérimentalement, ce phénomène de fragilisation diffère fortement suivant les conditions de test.

Lors d'une irradiation dans l'IR ( $\lambda = 1064 \text{ nm}$ ), il est par exemple possible de définir une fluence limite (de l'ordre de 50 % du seuil bas mesuré en mono-coup) pour laquelle l'accumulation de tirs n'a plus d'influence sur la tenue au flux laser du matériau (surface et volume). Dans ces conditions, l'énergie déposée au cours du tir n'est plus suffisante pour engendrer une modification irréversible du matériau. Ce phénomène de "stabilisation" de la fatigue de la silice à 1064 nm est important pour les applications des lasers de puissance dans lesquels le nombre de tirs requis devient très élevé.

On peut ainsi dégagé de ces résultats, un seuil d'endommagement fonctionnel permettant à l'utilisateur de garantir l'intégrité de ses composants optiques pour une application donnée.

Lors d'une irradiation dans l'UV ( $\lambda = 355$  nm), le comportement du matériau est très différent. La surface et le volume ne répondent pas de la même manière à la sollicitation laser. Ainsi, dans le cas des endommagements de volume, on assiste à une fatigue importante du matériau avec l'accumulation de tirs lasers. Ce phénomène s'amplifie lorsque la fréquence d'irradiation augmente. Ceci s'explique par la création de nouveaux défauts et donc l'existence d'effets collectifs très pénalisants pour la tenue au flux laser. Par contre dans le cas de la surface, l'accumulation de tirs a très peu d'effet sur sa tenue au flux. Le seuil de claquage du matériau reste équivalent après 1 ou  $10^4$  tirs successifs.

– **KDP:**

Dans le cas d'une irradiation à 1064 nm, un comportement similaire à celui de la silice est mis en évidence: l'accumulation de tirs fragilise le matériau. Du point de vue de l'utilisateur, il est également possible de définir une fluence limite en dessous de laquelle aucun effet de fatigue n'apparaît sur le matériau. A 355 nm, il semble que la tenue au flux laser du matériau volumique ne soit pas affectée par la succession de tirs à faibles fluences. Étant donné que ce résultat se confirme dans l'ensemble de la gamme des taux de répétition accessibles ( $f < 10$  Hz), nous pouvons supposer que s'il y a création de nouveaux défauts, alors leur temps de relaxation est tel qu'ils ne peuvent en aucun cas jouer le rôle de centres précurseurs de l'endommagement laser pour les tirs suivants.

D'un point de vue fonctionnel, cette étude soulève un point important au sujet de la spécification et la maintenance des lasers de puissance. En effet généralement, les fabricants de composants optiques caractérisent la tenue au flux de leurs optiques pour lasers de puissance simplement à l'aide de procédures de type 1:1 sans prendre réellement en compte les conditions futures d'utilisation (nombre de tirs successifs et taux de répétition). Par conséquent, ils sont obligés de sur estimer fortement la limite d'utilisation de leurs optiques sans pour autant avoir la certitude d'assurer un fonctionnement optimal. L'étude présentée ici montre l'intérêt de réaliser ces spécifications préalables.

## 6.3 État de l'Art sur l'amélioration de la tenue au flux laser

### 6.3.1 Mécanismes impliqués dans les phénomènes de conditionnement laser

#### Ejection des défauts absorbants

Dans le cas de composants optiques réalisés à l'aide de couches minces diélectriques de type " $HfO_2/SiO_2$ ", le conditionnement laser a été attribué à l'élimination des nodules d'Hafnium pouvant se former au cours du dépôt [124]. L'éjection ou la stabilisation des nodules à basse fluence permet ainsi d'éliminer les défauts sans pour autant créer un plasma (en surface ou en volume) pénalisant pour le matériau autour. Des mesures complémentaires de photothermie réalisées par Papendrew et al. [125] mettent d'ailleurs en évidence une forte diminution de l'absorption des nodules après traitement laser. Néanmoins, cette explication de conditionnement n'est pas suffisante puisque dans le cas de monocouches de  $SiO_2$  où il n'existe pas de nodules, un effet significatif de conditionnement laser est tout de même mis en évidence [126].

#### Recuit laser du matériau

Dans le cas des empilements multi-couches, différentes études basées sur l'observation par microscopie à force atomique de la surface mettent en avant une évolution de la rugosité lors d'irradiations laser à 1064 nm et à faible fluence [127,128]. Les auteurs associent la diminution de la rugosité à l'augmentation de la tenue au flux laser en surface du matériau étudié. Une étude similaire réalisée par Frink et al. [129] à l'aide d'une pré-irradiation par laser  $CO_2$  débouche sur les mêmes conclusions. L'échauffement important du matériau au cours de la pré-irradiation peut se rapprocher d'un recuit laser permettant de "réparer" les craquelures apparaissant en surface lors du dépôt. Cette hypothèse d'amélioration de la tenue au flux laser par diminution de la rugosité de surface est en accord avec les mécanismes de claquage diélectrique.

#### Désorption de l'eau

Comme nous l'avons montré au cours des différentes études présentées dans ce manuscrit, l'absorption optique du matériau à la longueur d'onde d'irradiation joue un rôle prépondérant dans l'initiation de l'endommagement laser. Selon Arenberg et al. [130], les molécules d'eau contenues dans les couches diélectriques absorbent une partie de l'énergie incidente (surtout dans l'IR) et contribuent à la diminution du seuil d'endommagement. Dans ces conditions, la pré-irradiation

laser a pour conséquence une désorption de ces molécules d'eau et donc une diminution de l'absorption optique. Néanmoins, ce type d'effet n'est pas permanent. C'est pourquoi un conditionnement laser régulier de ces empilements diélectriques est nécessaire. Il semble de plus, que le maximum d'efficacité soit atteint pour un traitement couplé "recuit laser/recuit thermique" des optiques [130].

### Influence de la longueur d'onde de conditionnement par rapport à la longueur d'onde d'utilisation

Runkel et al. [131] mettent en avant dans une étude publiée en 2002 deux résultats importants concernant le conditionnement laser des cristaux de KDP. Tout d'abord, ils attestent de l'effet du conditionnement excimère sur la tenue au flux à 355 nm du matériau. De plus, ils montrent qu'un conditionnement dans l'UV à basse fluence permet également d'améliorer la tenue au flux du cristal lorsqu'il est utilisé dans l'IR ( $\lambda = 1064$  nm). A contrario, il semble qu'une pré-irradiation dans l'IR n'ait aucun impact sur la tenue au flux du composant à 355 nm (figure 6.9). Notons que ce résultat justifie l'utilisation uniquement d'un laser UV pour le conditionnement des cristaux de KDP utilisés en doubleur ou en tripleur.

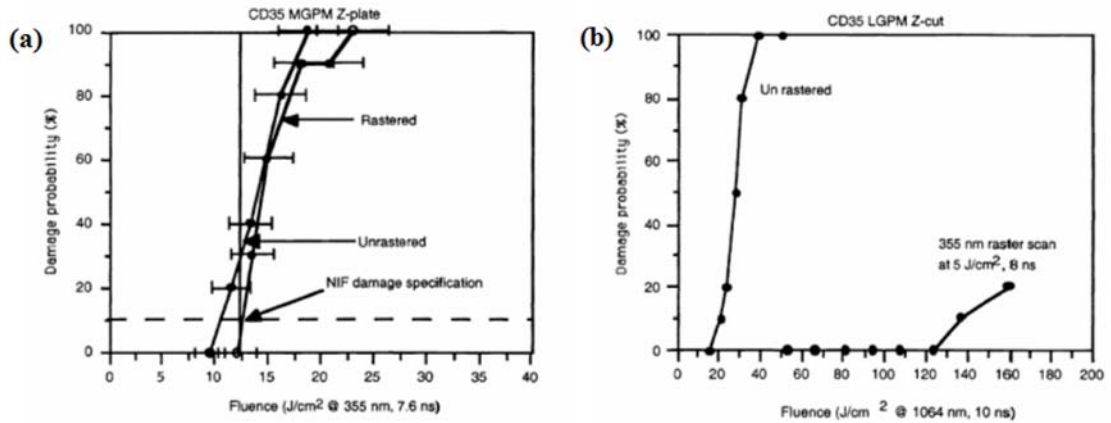


FIG. 6.9 – (a): irradiation  $1\omega$ /test  $3\omega$  (b): irradiation  $3\omega$ /test  $1\omega$  (images tirées de [131])

Ce résultat majeur sur le conditionnement des cristaux de KDP montre clairement que le conditionnement laser visant à améliorer la tenue au flux du composant, dépend de l'utilisation qui en est faite. Un étude similaire réalisée sur des empilements de couches minces diélectriques [132] montre aussi que la correspondance entre la longueur d'onde de pré-irradiation et celle d'utilisation est un paramètre prédominant afin d'obtenir le meilleur conditionnement possible. Ainsi, suivant la longueur d'onde de travail ou suivant le type de laser de puissance

utilisé, il faudra adapter le traitement par pré-irradiations laser. En particulier, des paramètres tels que la longueur d'onde ou la durée d'impulsion devront être choisis avec la plus grande attention afin d'obtenir une efficacité de traitement maximale.

### 6.3.2 Augmentation de la tenue au flux laser de différents matériaux soumis à des tirs multiples

Les mécanismes physiques susceptibles d'intervenir sont nombreux et surtout mal connus. Il est donc très difficile de définir un seul et unique protocole qui permettrait d'améliorer la tenue au flux laser de tous les composants optiques d'un laser de puissance. Ainsi, chaque technique présentée dans cette étude bibliographique et chaque analyse des mécanismes mis en jeu doivent être spécifiées pour un couple "matériau/longueur d'onde" précis. Historiquement, les choix des matériaux étudiés dans la littérature ainsi que des longueurs d'onde de conditionnement sont fortement liés aux besoins des projets tels que le "Laser Megajoule" ou le "National Ignition Facility". Afin de mieux comprendre le choix des couples "matériau/longueur d'onde", rappelons que dans ces deux installations, les empilements diélectriques (miroirs et polariseurs) sont utilisés dans la partie infrarouge ( $\lambda = 1064$  nm) alors que les hublots de silice et les cristaux de KDP sont soumis en fin de chaîne à un rayonnement ultraviolet ( $\lambda = 355$  nm).

#### Empilements diélectriques $HfO_2/SiO_2$

Les premiers travaux de conditionnement ont été réalisés sur les optiques situées en début de chaîne laser. Ces composants (essentiellement des miroirs et des polariseurs) sont réalisés par dépôt de couches minces diélectriques de type " $HfO_2/SiO_2$ ". De nombreuses techniques basées sur une pré-irradiation dans l'IR ont été mises en oeuvre. En particulier, nous pouvons citer les travaux de Wolf et al. qui ont débouché en 1995 sur le dépôt d'un brevet [133].

Composant optique	Miroir simple $\lambda$	Miroir multi- $\lambda$	Polariseur	Coupleur
Nombre de couches	27	64	32	1
Seuil bas avant conditionnement	20 $J/cm^2$	25 $J/cm^2$	20 $J/cm^2$	10 $J/cm^2$
Seuil bas après conditionnement	45 $J/cm^2$	50 $J/cm^2$	40 $J/cm^2$	35 $J/cm^2$

TAB. 6.3 – *Effet du conditionnement à 1064 nm sur des empilements de couches minces diélectriques (valeurs tirées de la référence [133])*

Leur procédure de conditionnement consiste à irradier le composant à 1064 nm à l'aide de fluences inférieures au seuil d'endommagement et croissantes au

fil des passages (procédure de raster-scan). Les résultats obtenus sur différents empilements (tableau 6.3) montrent tous une amélioration significative du seuil bas d'endommagement ( $\times 2$  à  $\times 2.5$ ) ainsi qu'une diminution de la densité de dommages pouvant apparaître au cours de l'utilisation.

### Cristaux de KDP et DKDP

La tenue au flux laser des composants optiques réalisés à partir de KDP et DKDP dépend fortement des conditions de fabrication des cristaux. En effet suivant le type de croissance utilisée (lente ou rapide), les seuils bas d'endommagement peuvent s'avérer très différents. A titre d'exemple, une étude réalisée en 1997 par Fujioka et al. [134] met en évidence un facteur 10 entre le seuil d'endommagement (à 1064 nm) d'un cristal obtenu par croissance lente ( $15 \text{ J/cm}^2$ ) et celui du même type de cristal obtenu à l'aide d'une croissance rapide ( $1.8 - 4.3 \text{ J/cm}^2$ ). Selon les auteurs cette diminution de tenue au flux provient de la présence en excès de groupements OH très absorbants dans le second cas. Pour une croissance rapide, le seuil bas d'endommagement laser peut être amélioré à l'aide d'un conditionnement thermique en fin de fabrication [134]. De récents travaux [135] montrent qu'il est maintenant possible d'obtenir par croissance rapide, des cristaux de KDP dont les seuils d'endommagement se rapprochent des spécifications requises pour un laser de puissance. En effet, l'utilisation de nouvelles solutions chimiques de départ permettent d'améliorer la tenue au flux du cristal d'un facteur 1.5 pour une irradiation dans l'IR (1064 nm).

Néanmoins, les améliorations des différentes étapes de fabrication ne sont pas suffisantes pour atteindre les spécifications requises pour des lasers de puissance tels que le LMJ ou le NIF ([136, 137]). C'est pourquoi de nombreuses études sont toujours en cours afin d'améliorer la tenue au flux des cristaux de KDP par conditionnement laser. Tous les travaux publiés jusqu'à présent développent des procédures de conditionnement similaires à celles utilisées pour les empilements diélectriques  $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ . Il s'agit de pré-irradiation UV sous seuil d'endommagement par raster-scan. Les principaux lasers utilisés sont des sources Nd:YAG ( $\lambda = 355 \text{ nm}$ ) et des sources excimères ( $\lambda 308 \text{ nm} \rightarrow 351 \text{ nm}$ ).

Composant	Laser de conditionnement	gain	Ref
DKDP	Nd:YAG (355 nm)	$1.1 \rightarrow 2.2$	[138]
	Excimère (308 nm)	$1.0 \rightarrow 2.4$	
	Excimère (248 nm)	$1.2 \rightarrow 2.7$	
KDP	Nd:YAG (355 nm)	1.4	[131]
KDP	Excimère (351 nm)	$1.9 \rightarrow 2.6$	[139]

TAB. 6.4 – *Effet du conditionnement UV sur des cristaux de KDP et DKDP*

Notons que les résultats obtenus au cours de ces différentes études révèlent l'existence de variations importantes de tenue au flux laser d'un cristal de KDP à

un autre, et par conséquent, des variations de conditionnement tout aussi significatives. En effet lors d'une croissance rapide, certaines caractéristiques optiques (en particulier l'absorption) ne sont pas maîtrisées et peuvent être très différentes d'un cristal à l'autre. Or d'un point de vue endommagement laser, nous savons très bien que l'absorption optique du matériau joue un rôle prépondérant dans l'initiation du claquage. Par conséquent, il est donc très difficile de donner un poids réel aux gains de conditionnement présentés dans la littérature. La comparaison des résultats doit se faire avec beaucoup de précautions.

### Silice Suprasil

Pour la silice Suprasil, deux types de conditionnement laser ont été testés afin de limiter l'apparition d'endommagements de surface lors d'une irradiation à 355 nm.

- Une première technique consiste à exposer la surface de l'optique à une irradiation laser de type  $CO_2$  ( $\lambda = 10.6 \mu m$ ) [123,140]. L'illumination continue du matériau agit alors comme un recuit de la surface afin d'en diminuer sa rugosité. Expérimentalement, le seuil d'endommagement de la surface ainsi "polie" peut augmenter d'un facteur 2 à 3. Notons que cette technique n'a jamais été réellement mise en oeuvre pour le conditionnement de grandes optiques de silice car le traitement par laser  $CO_2$  a globalement pour conséquence une accumulation de contraintes mécaniques dans le matériau ainsi qu'une forte dégradation de la planéité de la surface. Néanmoins, Brusasco et al. [123] ont montré en 2002 qu'une illumination répétée à très faible puissance pouvait également conduire à une amélioration de la tenue au flux laser du composant en évitant les effets secondaires liés aux contraintes résiduelles pouvant apparaître sur un matériau porté à haute température.
- La seconde solution adopte un procédé identique à celui du conditionnement des couches minces diélectriques. Le brevet [141] développé ici est donc basé comme précédemment sur une pré-irradiation à 355 nm du composant avec des densités d'énergies croissantes mais toujours inférieures au seuil de claquage du matériau en surface. Cette technique doit permettre un recuit local du matériau accompagné d'une élimination des défauts précurseurs de l'endommagement en surface. Les premiers résultats publiés montrent une amélioration de la tenue au flux des lames de silice ainsi traitées (figure 6.10).

Contrairement aux résultats mis en évidence sur les couches minces de type  $HfO_2/SiO_2$  et sur les cristaux de KDP, le seuil bas d'endommagement ici n'est pas amélioré. Le matériau ainsi pré-irradié continue toujours à s'endommager à partir de la même fluence d'irradiation mais la densité d'endommagements créés au cours de l'irradiation diminue, quant à

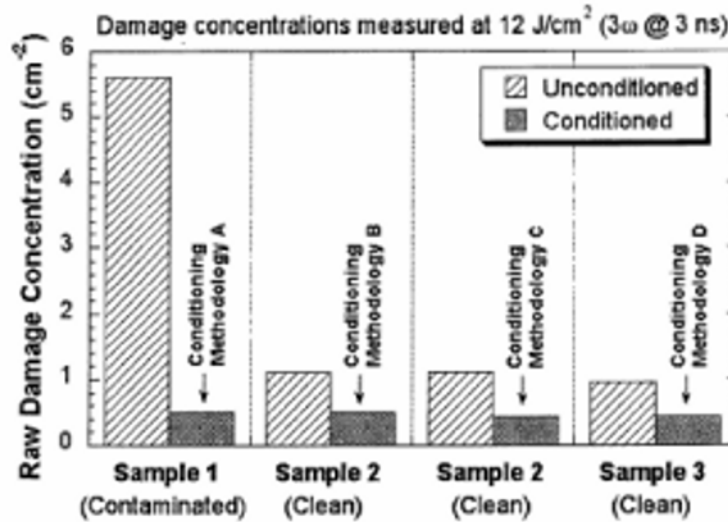


FIG. 6.10 – *Effet du conditionnement à 355 nm sur la tenue au flux d'un verre de silice (Image tirée de la référence [141])*

elle, fortement. Suivant le procédé, il est possible de diminuer cette densité d'endommagements d'un facteur 2 à 6.

Ce type d'étude sur le conditionnement de la silice massive à 355 nm reste pour l'instant assez isolé. Peu de publications ont à ce jour confirmé ou infirmé les résultats discutés ici. En particulier, il semble que la robustesse du procédé ne soit pas encore totalement démontrée. Des résultats complémentaires sont donc nécessaires pour conclure.

### 6.3.3 Techniques alternatives pour l'amélioration de la tenue au flux laser des composants optiques

Nous venons de voir dans les paragraphes précédents qu'une pré-irradiation laser sous seuil d'endommagement permettait de faire disparaître les précurseurs sans endommager de façon irréversible le matériau hôte. D'autres techniques plus "directes" permettent également de faire disparaître les défauts de surface: Nous pouvons par exemple citer la réduction de dommages par attaque chimique ou encore l'ablation de la couche surfacique contenant ces centres précurseurs.

#### Réduction de dommages par attaque acide

Cette technique consiste à traiter la surface du composant une fois que les premiers endommagements laser apparaissent. Ainsi un traitement à l'acide fluorhy-



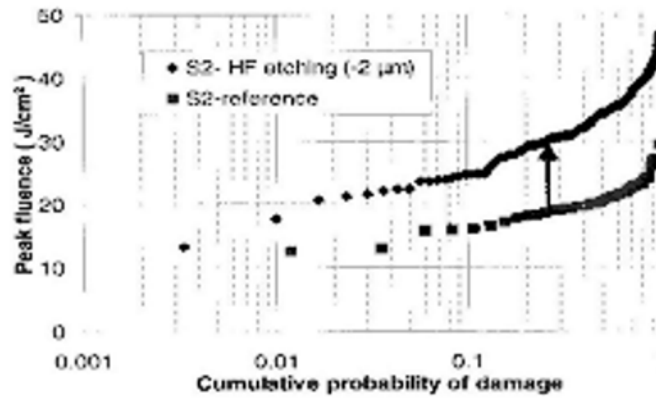


FIG. 6.11 – Comparaison de la tenue flux surfacique d’une lame de silice avant et après traitement à l’acide fluorhydrique (image tirée des travaux de Bouchut et al. [142])

drique permet d’effectuer un retrait de la couche de surface endommagée et par conséquent de stopper la croissance des endommagements. L’attaque chimique de la surface permet donc de faire disparaître ces dommages ainsi que le matériau environnant fortement fragilisé au cours du processus d’endommagement. La figure 6.11 est une illustration de la tenue au flux d’une lame de silice avant et après attaque chimique. L’ablation de la couche endommagée a pour conséquence une diminution significative de la probabilité d’endommagement à une fluence donnée.

### Ablation de la couche de surface par faisceaux d’ions

Dans le cas des endommagements de surface, nous avons montré précédemment que le claquage était essentiellement dû à la présence d’impuretés de polissage sur une épaisseur de quelques microns. Nous avons vu aussi que dans certains cas ces impuretés pouvaient être éliminées grâce à un recuit par laser  $CO_2$  ou encore par attaque chimique. Afin d’éliminer ces défauts, Kamimura et al. [143–145] proposent une autre solution. Leur technique consiste à faire disparaître cette couche de contamination en bombardant le substrat à l’aide d’un faisceau d’ions avant utilisation de l’optique.

Les résultats d’endommagement laser obtenus sur des échantillons traités de cette façon montrent (figure 6.12) une amélioration d’un facteur 2 au moins du seuil d’endommagement. Plus la couche contenant les défauts de surface est ablatée, plus la tenue au flux est grande. Néanmoins ce type de traitement doit être utilisé avec précaution : Certes on améliore de façon significative la tenue au flux laser du composant mais, l’ablation d’une couche de contamination peut entraîner des variations de rugosité importantes en surface.

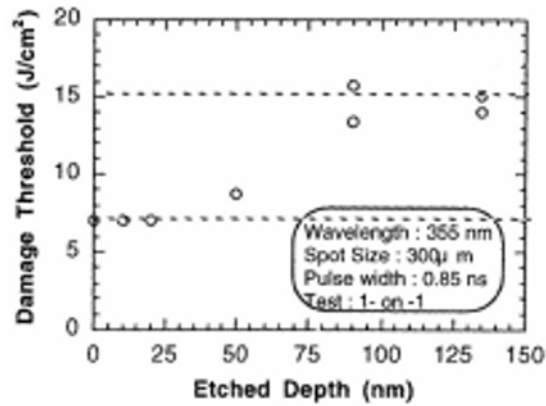


FIG. 6.12 – Influence de la profondeur d'ablation sur la tenue au flux surfacique d'une lame de silice (image tirée des travaux de Kamimura et al. [143])

## 6.4 Etude expérimentale du conditionnement laser de la silice

### 6.4.1 Procédure de conditionnement par laser Nd:YAG à 355 nm

Expérimentalement, le procédé de conditionnement laser utilisé pour cette campagne de mesures se rapproche sensiblement de ce que nous avons décrit dans l'étude bibliographique précédente. En effet, nous développons un procédé semblable à celui mis en place dans le brevet américain [123]. La pré-irradiation laser à 355 nm est effectuée à l'aide du dispositif développé à l'Institut Fresnel. L'utilisation du laser Nd:YAG UV présenté au chapitre 2 impose certains aménagements dans la définition de la procédure de conditionnement laser.

#### – Procédure d'irradiation:

L'utilisation d'un laser de faible énergie nécessite, comme nous l'avons vu précédemment, l'utilisation de spots d'irradiation de petites tailles (typiquement quelques dizaines de  $\mu\text{m}$  à  $1/e^2$ ) afin d'obtenir des densités d'énergie adaptées. Or la technique de conditionnement laser nécessite une irradiation homogène de la zone à traiter. Pour cela, la procédure dite de "raster-scan" permet de simuler un faisceau étendu à l'aide d'un recouvrement de faisceaux gaussiens de plus petite taille. Des études théoriques ont montré l'influence du motif de recouvrement sur l'énergie totale déposée. Hu et al. [146] montrent qu'un maillage hexagonal réalise le meilleur compromis entre un recouvrement maximal et un nombre minimal de zones irradiées. Afin de simplifier la procédure et son automatisation, nous réalisons un

simple recouvrement de gaussiennes (entre 80 % et 90 %) dans les deux directions du plan d'irradiation comme décrit figure 6.13.

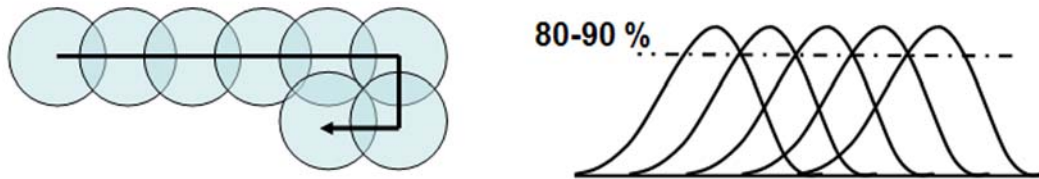


FIG. 6.13 – *Procédure de Raster-Scan utilisée pour le conditionnement laser de la silice*

– **Taille du spot d'irradiation:**

Le choix de de la taille du spot d'irradiation ne peut pas se faire sans précautions. Ainsi un raisonnement simpliste pourrait conduire à utiliser un faisceau le plus large possible afin de réduire au maximum la durée de la campagne d'irradiation. Cependant, comme nous l'avons vu au chapitre 3, l'endommagement laser du matériau peut être lié à l'existence de phénomènes non-linéaires (principalement de l'autofocalisation) lorsque la puissance crête du faisceau d'irradiation dépasse une valeur critique ( $P_{Cr}$ ). Il est donc nécessaire d'éviter ce type de configuration en définissant une taille maximale à ne pas dépasser. Dans le cas de la silice, la puissance critique d'autofocalisation est estimée autour de quelques centaines de kW [147]. Afin d'éviter tout problème de filamentation, nous faisons donc le choix de ne jamais travailler avec des puissances supérieures à 100 kW pour une irradiation à 355 nm. Dans nos gammes de fluences, ceci impose donc de fixer la largeur maximale du spot d'irradiation à **100  $\mu\text{m}$  à  $1/e^2$**  pour une durée d'impulsion laser de 7 ns. Notons que ce point important n'est pas discuté dans le brevet américain [123] et que seule l'utilisation de faisceaux focalisés permet réellement d'éviter l'apparition de filaments lors du conditionnement d'optiques relativement épaisses.

– **Nombre de passages et fluences d'irradiation:**

Du fait des caractéristiques du laser de conditionnement (fréquence de répétition limitée à 10 Hz et faible taille de spot), le nombre de passage successifs ne peut pas être trop important si on désire conditionner de grandes

surfaces. Néanmoins, l'énergie déposée au cours de la pré-irradiation doit être suffisante afin de modifier les caractéristiques du matériau. C'est pourquoi, nous avons utilisé une procédure constituée de 3 passages avec des fluences croissantes et relativement proches du seuil d'endommagement du composant à traiter (figure 6.14).

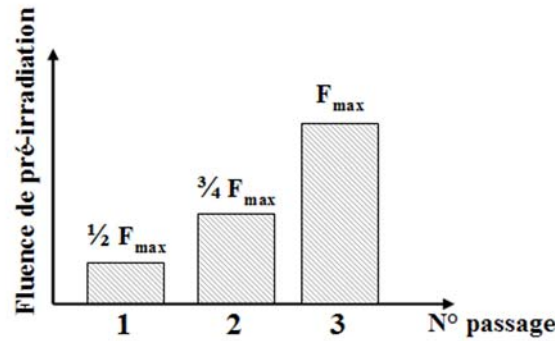


FIG. 6.14 – Nombre de passages successifs et fluences d'irradiation

Afin d'éviter l'endommagement du composant au cours de la procédure de conditionnement, le seuil d'endommagement (noté  $F_{\max}$ ) est mesuré en mode R:1. Cette procédure permet de prendre en compte un effet éventuel de fatigue qui pourrait apparaître lors d'une irradiation à basse fluence et en tirs répétés. Expérimentalement, la surface commence à présenter des dommages lorsque un des tirs successifs laser dépasse  $20 \text{ J/cm}^2$ .

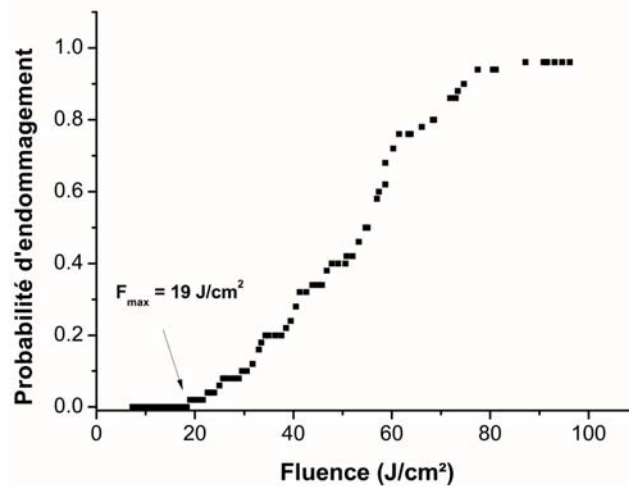


FIG. 6.15 – Probabilité d'endommagement en surface d'une lame de silice ( $\lambda = 355 \text{ nm}$ ) mesurée en mode R:1

### 6.4.2 Effet du conditionnement sur la tenue au flux laser du composant

La première campagne de conditionnement laser a été réalisée sur une lame de silice Suprasil II superpolie double face. Une zone de  $3 \text{ cm}^2$  vierge de tout traitement laser et ne présentant aucun défaut visible au microscope optique a été choisie. Trois passages à des fluences inférieures à  $F_{max}$  ont alors été réalisés (cf. tableau 6.5).

	Fluence d'irradiation
1er passage	$8 \pm 1 \text{ J/cm}^2$
2eme passage	$12 \pm 1 \text{ J/cm}^2$
3eme Passage	$16 \pm 1 \text{ J/cm}^2$

TAB. 6.5 – Fluence d'irradiation utilisée lors de chaque passage

L'étude de la tenue au flux du composant avant et après irradiation est réalisée sur le même banc. Pour le test, nous avons choisi d'utiliser une lentille permettant d'obtenir au point de focalisation, un faisceau gaussien de  $22 \mu\text{m}$  à  $1/e^2$ . Dans ces conditions, la figure 6.16 représente la probabilité d'endommagement du matériau mesurée dans une zone conditionnée et dans une zone vierge de toute pré-irradiation laser. Étant donné que le faisceau d'irradiation utilisé peut être considéré comme collimaté ( $Z_R = 43 \text{ mm}$ ) par rapport à la lame de silice étudiée ( $e=50 \text{ mm}$ ), les endommagements se font sur la face arrière de l'échantillon.

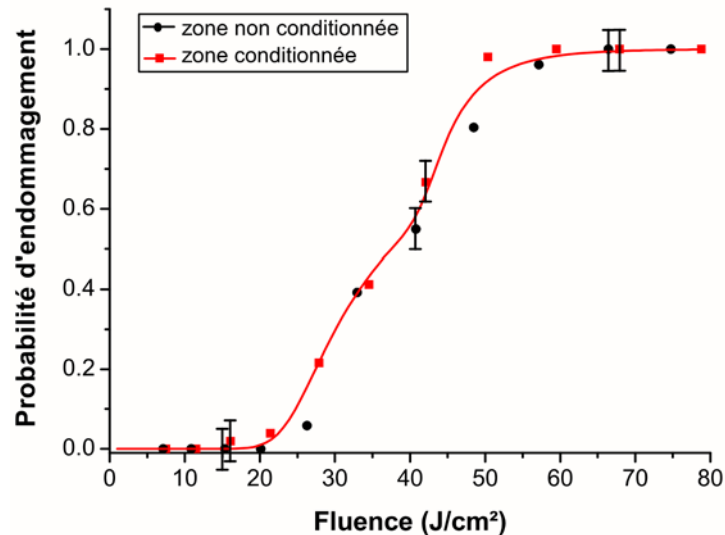


FIG. 6.16 – Probabilités d'endommagement mesurées à  $355 \text{ nm}$  en surface à l'aide d'un faisceau focalisé

La mesure de tenue au flux laser sur une zone conditionnée ne permet pas de mettre en évidence une évolution significative du matériau une fois la pré-irradiation effectuée.

La comparaison de ce résultat avec celui publié dans le brevet américain met en évidence deux comportements très différents. Expérimentalement, le principal changement réside dans la taille du faisceau laser utilisé pour les tests de tenue au flux. Nous savons que le test statistique à l'aide d'un faisceau focalisé ne permet pas de mettre en évidence des défauts dont la densité est faible. Or dans le cas de la silice, le conditionnement laser peut être vu comme un nettoyage des défauts de surface. Dans nos conditions de test, la mise en évidence de l'amélioration de la tenue au flux est donc d'autant plus difficile que la densité de contaminants en surface avant irradiation est faible (nettoyage systématique du substrat avant la pré-irradiation). Cette hypothèse est d'ailleurs confirmée par le fait que le procédé de conditionnement "américain" est optimal lorsque le composant d'origine est fortement pollué. Afin d'étayer ce résultat, une autre lame de silice a été conditionnée suivant un protocole identique puis testée en tenue au flux laser par raster scan à l'aide d'un faisceau large afin de révéler tous les défauts. Pour cela, nous avons utilisé l'installation LUTIN du CEA/CESTA (355 nm) qui permet d'irradier des zones de  $0.6 \text{ mm}^2$ .

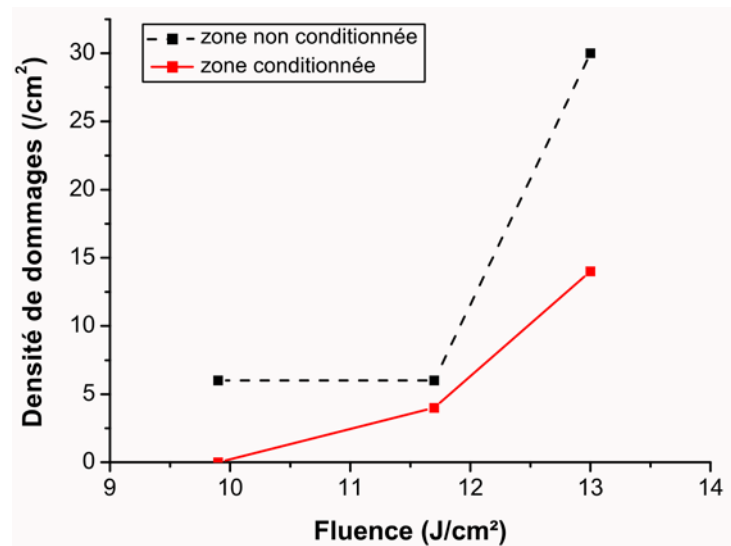


FIG. 6.17 – Probabilités d'endommagement mesurées à 355 nm en surface à l'aide d'un faisceau large

La figure 6.17 représente la densité d'endommagements pouvant apparaître en fonction de la fluence d'irradiation dans une zone conditionnée ou zone non conditionnée. Dans ce cas, nous pouvons mettre en évidence une diminution significative de la densité d'endommagements pouvant apparaître lorsque l'irradiation

se fait dans une zone conditionnée. Notons que le seuil bas d'endommagement (fluence en dessous de laquelle la densité de dommages est nulle) est également amélioré dans la zone traitée.

### 6.4.3 Bilan sur le conditionnement de la silice à 355 nm

Nous avons montré que l'effet du conditionnement n'est pas détectables avec un faisceau fortement focalisé surtout si les optiques ont subi un nettoyage préalable efficace. Par contre, une irradiation en faisceau étendu montre que la densité de défauts en surface diminue fortement dans la zone ayant été conditionnée et valide ainsi le phénomène de conditionnement de la silice à 355 nm.

A travers cette étude sur le conditionnement laser à 355 nm de lames en silice, nous montrons de plus la faisabilité d'une automatisation du procédé. Cependant, l'utilisation de faisceaux gaussiens fortement focalisés implique des temps de traitement très importants. Il faut environ 12h pour pré-irradier en trois passages successifs une zone de  $1\text{ cm}^2$ , ce qui en l'état, ne permet pas une industrialisation du procédé. Nous discuterons donc plus loin de l'importance de la mise en forme du faisceau sur la durée de traitement. Ainsi, nous verrons dans le cas du conditionnement laser du KDP, que l'utilisation d'un faisceau de type "top-hat" permettrait de diminuer fortement cette durée.

## 6.5 Etude expérimentale du conditionnement laser du KDP

### 6.5.1 Introduction

La comparaison des deux courbes de probabilité mesurées en 1:1 et en R:1 (figure 6.18) montre que l'irradiation successive d'un site à partir de fluences très basses et croissantes permet d'améliorer sensiblement la tenue au flux du matériau. Ce résultat permet d'ores et déjà de mettre en évidence un effet de conditionnement. Le but de ce paragraphe est donc de définir un protocole systématique permettant de transposer cette amélioration au composant tout entier.

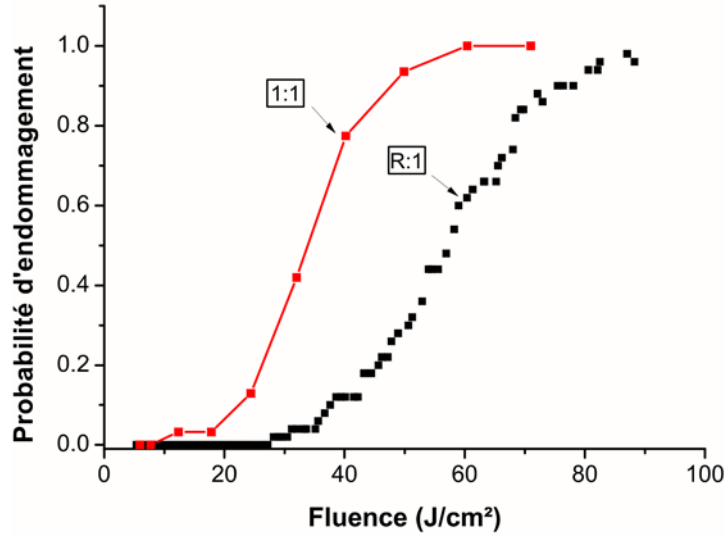


FIG. 6.18 – Comparaison des probabilités d'endommagement mesurées en 1:1 et R:1 en volume d'un cristal de KDP ( $\lambda = 355 \text{ nm}$ )

### 6.5.2 Estimation de l'amélioration de la tenue au flux laser: gain de conditionnement

Expérimentalement, la tenue au flux laser des cristaux testés dépend fortement de plusieurs paramètres. Nous pouvons citer en particulier la nature du cristal (KDP ou DKDP), le type de croissance (rapide ou lente), leurs positions dans le cristal initial et surtout leurs orientations de découpe. A titre d'exemple, la figure 6.19 illustre les différentes utilisations possibles d'un cristal de KDP suivant la position de découpe.

Des tests de tenue au flux réalisés au CEA/Le Ripault montrent également (figure 6.20) qu'un cristal taillé pour fabriquer un tripleur de fréquences ( $1\omega + 2\omega \rightarrow 3\omega$ ) possède une tenue aux laser ( $\lambda = 351 \text{ nm}$ ) environ deux fois supérieure à celle d'un cristal taillé pour fonctionner en doubleur de fréquences ( $1\omega + 1\omega \rightarrow 2\omega$ ).

Étant données les dispersions importantes obtenues sur les courbes de probabilités d'endommagement en fonction du cristal testé, nous devons définir un critère unique permettant de quantifier l'effet du procédé de conditionnement laser sur la tenue au flux. Ainsi, pour une meilleure comparaison entre échantillons, les améliorations sont exprimées par le rapport de l'intégrale de la courbe de probabilité d'endommagement de la zone conditionnée (C) sur l'intégrale de la courbe de probabilité d'endommagement obtenue sur une zone vierge (NC) de toute irradiation. Ce rapport définit un "**gain de conditionnement**" (g):



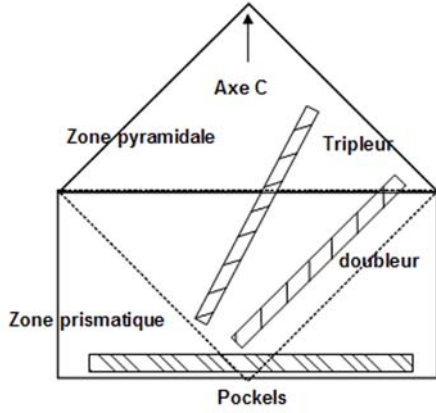


FIG. 6.19 – Utilisations possibles d'un cristal de KDP suivant sa position dans la boule

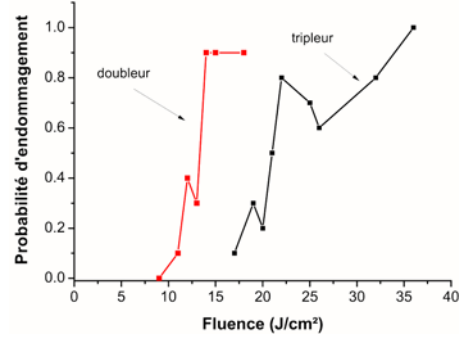


FIG. 6.20 – Probabilités d'endommagement mesurées à l'aide d'un laser excimère ( $\lambda = 351 \text{ nm}$ )

$$g = \frac{\int_C q.dF}{\int_{NC} q.dF} \quad (6.8)$$

où:

- $p = (1 - q)$  = probabilité d'endommagement
- $F$  = fluence d'irradiation ( $J/cm^2$ )

### 6.5.3 Conditionnement par laser Nd:YAG à 355 nm

La pré-irradiation ainsi que les mesures de probabilité d'endommagement sont réalisées à l'aide d'un laser Nd:YAG à 355 nm. Afin d'effectuer l'ensemble de la campagne de mesure dans les mêmes conditions expérimentales, le cristal étudié est directement placé dans sa configuration de doublage de fréquence.

Comme dans le cas des lames de silice, nous réalisons une procédure de conditionnement en 3 passages successifs avec des fluences d'irradiation croissantes. Au vu des courbes de seuil présentées figure 6.18, une fluence maximale de  $15 J/cm^2$  permet de réaliser une pré-irradiation laser sans risque d'endommager le composant. Dans ces conditions, une procédure de raster-scan à l'aide d'un faisceau de  $95 \mu m$  à  $1/e^2$  à été réalisée sur une zone d'environ  $3 cm^2$ . Les différentes fluences de pré-irradiation sont détaillées dans le tableau 6.6.

La zone ainsi conditionnée est ensuite testée en mode 1:1 afin de comparer sa tenue au flux laser en volume avec celle d'une zone vierge de toute pré-irradiation. La figure 6.21 illustre l'évolution des probabilités d'endommagement dans ces deux cas. Ces résultats expérimentaux attestent d'une amélioration de la tenue au flux du KDP soumis à une pré-irradiation sous seuil d'endommagement. On

	Fluence d'irradiation
1er passage	$6 \pm 1 \text{ J/cm}^2$
2eme passage	$10 \pm 1 \text{ J/cm}^2$
3eme Passage	$13 \pm 1 \text{ J/cm}^2$

TAB. 6.6 – Fluence d'irradiation utilisée lors de chaque passage

assiste, d'une part, à une augmentation du seuil bas d'endommagement ( $12 \text{ J/cm}^2 \rightarrow 20 \text{ J/cm}^2$ ) et d'autre part, à une diminution de la probabilité d'endommagement dans la zone conditionnée. Globalement, le gain de conditionnement atteint ici **20 %**.

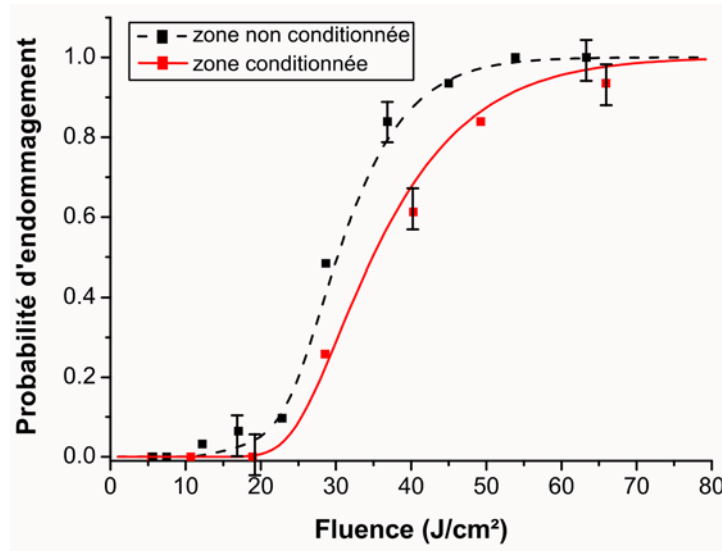


FIG. 6.21 – Effet du conditionnement laser sur la probabilité d'endommagement en volume d'un cristal de KDP ( $\lambda = 355 \text{ nm}$ )

L'ajustement théorique des courbes de probabilité d'endommagement permet également de suivre l'évolution des centres précurseurs avant et après conditionnement laser (figure 6.22). Dans le matériau "avant conditionnement", il est possible d'extraire deux races de défauts dont la répartition de claquage en fonction de la fluence d'irradiation est donnée par la courbe bleue.

- (1): Après conditionnement, le premier type de défaut (centré autour de  $15 \text{ J/cm}^2$ ) a disparu. Ceci peut donc expliquer l'augmentation du seuil bas d'endommagement laser du composant après conditionnement. La pré-irradiation sous seuil a permis de faire disparaître le défaut le plus pénalisant.

- (2): En ce qui concerne le second type de défaut initiateur présent dans le matériau testé, le conditionnement laser a eu pour conséquence une diminution de sa densité. Pour la tenue au flux ceci se concrétise par une diminution de la probabilité d'endommagement pour une fluence donnée.

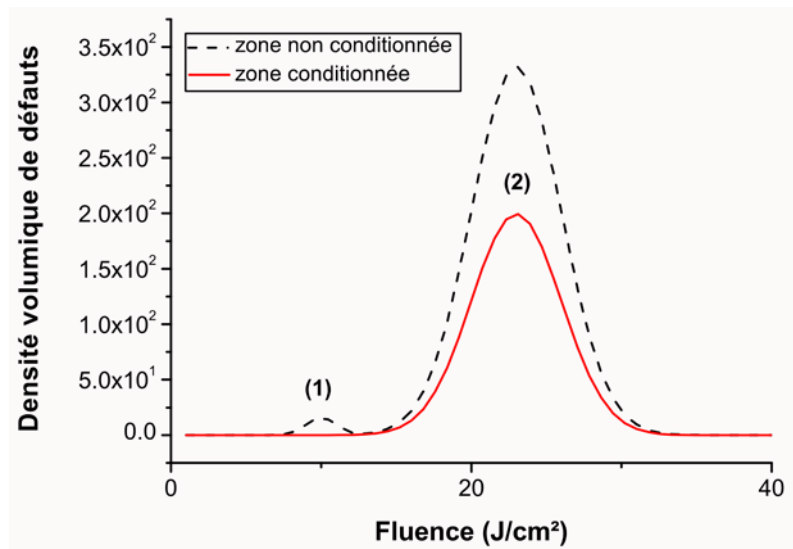


FIG. 6.22 – Evolution des défauts précurseurs de l'endommagement lors d'un conditionnement laser à 355 nm

## Bilan

L'ensemble de ces résultats confirme que dans le cas des cristaux de KDP, le conditionnement laser est bénéfique pour la tenue au flux du composant. La pré-irradiation permet d'augmenter son seuil d'endommagement mais également de diminuer la densité de dommages pouvant apparaître pour des densités d'énergie plus élevées. Il faut toutefois rappeler que la durée d'un conditionnement à l'aide d'un petit faisceau est un élément pénalisant lorsqu'il est question d'améliorer la tenue au flux d'optiques de grandes dimensions. Pour faire face à ce verrou technologique, il semble que l'utilisation d'un laser excimère puisse régler un certain nombre de problèmes:

- La mise en forme du faisceau issu d'un laser excimère permet d'obtenir à l'aide de matrices de micro-lentilles des faisceaux "top-hat" de grandes dimensions. Dans ces conditions, le recouvrement des faisceaux n'est plus nécessaire pour obtenir une irradiation homogène et par conséquent le temps de conditionnement diminue.

- Les taux de répétition ( $> 100$  Hz) permettent d'augmenter la vitesse de traitement et par conséquent d'effectuer en un temps donné un nombre plus important de passages successifs.

Le tableau 6.7 illustre donc l'avantage d'un laser excimère pour le conditionnement laser des matériaux optiques.

	<b>Nd:YAG</b> $\omega = 100 \mu\text{m}$	<b>Excimère top-hat</b> $0.5 \text{ mm}^2$
<b>Nombre de rampes</b>	6	10
<b>Vitesse</b>	15 mm/s	40 mm/s
<b>Durée du conditionnement</b>	252 h	1h30

TAB. 6.7 – Temps de conditionnement pour une surface de (15 cm x 15 cm) en fonction de la technologie utilisée

#### 6.5.4 Conditionnement par laser Excimère à 351 nm

En collaboration avec le CEA/Le Ripault, nous avons réalisé une campagne de conditionnement laser de cristaux de KDP dans laquelle la pré-irradiation des composants est réalisée au CEA par laser excimère ( $\lambda = 351$  nm). Les tests de tenue au flux sont ensuite effectués à l'Institut Fresnel avec un laser Nd:YAG ( $\lambda = 355$  nm).

##### Description du banc de conditionnement du CEA/Le Ripault

Les campagnes de conditionnement sont réalisées à l'aide du système présenté figure 6.23. Le laser utilisé pour la pré-irradiation des composants optiques est une source excimère (GSI LUMONICS PM 846) pouvant émettre à 351 et 353 nm (XeF). L'énergie maximale délivrée est de 275 mJ avec une durée d'impulsion de 20 ns à mi-hauteur. La fréquence de répétition est fixée à 100 Hz. En sortie de la cavité laser, le faisceau laser est mis en forme à l'aide d'une matrice de micro-lentilles. La répartition spatiale du faisceau au niveau de l'échantillon présente un profil "top-hat" selon le grand axe (axe x) et un profil quasi-gaussien le long du petit axe (axe y). Les dimensions du faisceau ainsi focalisé sont  $759 \mu\text{m}$  (FWHM) par  $346 \mu\text{m}$  ( $1/e^2$ ). L'échantillon de KDP à conditionner est positionné dans le faisceau laser à l'aide d'un système motorisé 3 axes.

Durant le processus de conditionnement, différents types de mesures sont réalisées simultanément sur la zone irradiée. Des cartographies de luminescence, d'absorption et de diffusion volumique sont enregistrées en temps réel. L'ensemble de ces données permet notamment de détecter l'apparition d'endommagements au cours du conditionnement et leur évolution.

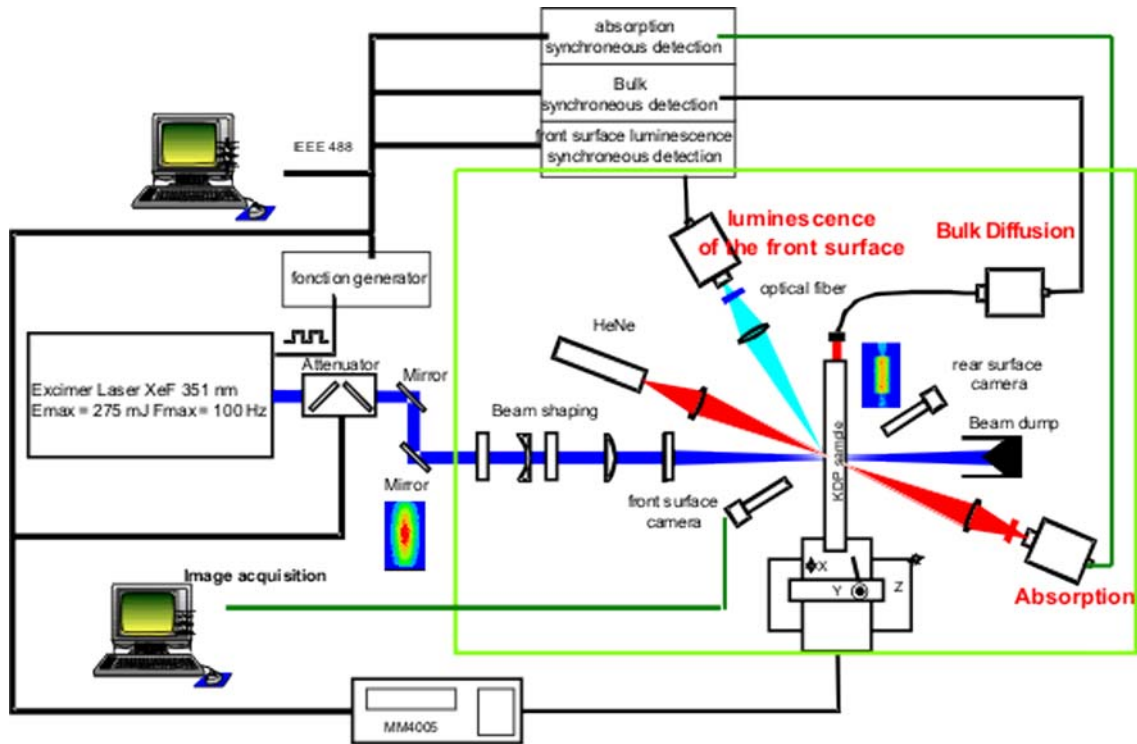


FIG. 6.23 – Dispositif de conditionnement excimère ( $\lambda = 351 \text{ nm}$ ) développé au CEA/Le Ripault

### Procédure de conditionnement

L'inconvénient du dispositif expérimental présenté ici réside dans la faible profondeur de foyer du laser excimère utilisé pour la pré-irradiation. En effet, des mesures d'énergies réalisées le long de l'axe Z montrent que dès que l'on s'éloigne du plan de focalisation la fluence d'irradiation décroît fortement. Or nous savons que l'effet du conditionnement dépend essentiellement de l'énergie déposée au cours de la pré-irradiation. Dans notre cas, la profondeur de champ effective ( $F > 0.9 F_{max}$ ) est estimée à 0.4 mm. Le seul moyen pour réaliser un conditionnement global du composant est donc de procéder plan par plan.

La figure 6.24 représente une procédure de conditionnement d'un échantillon de KDP réalisée selon 3 plans consécutifs (face avant, volume et face arrière).

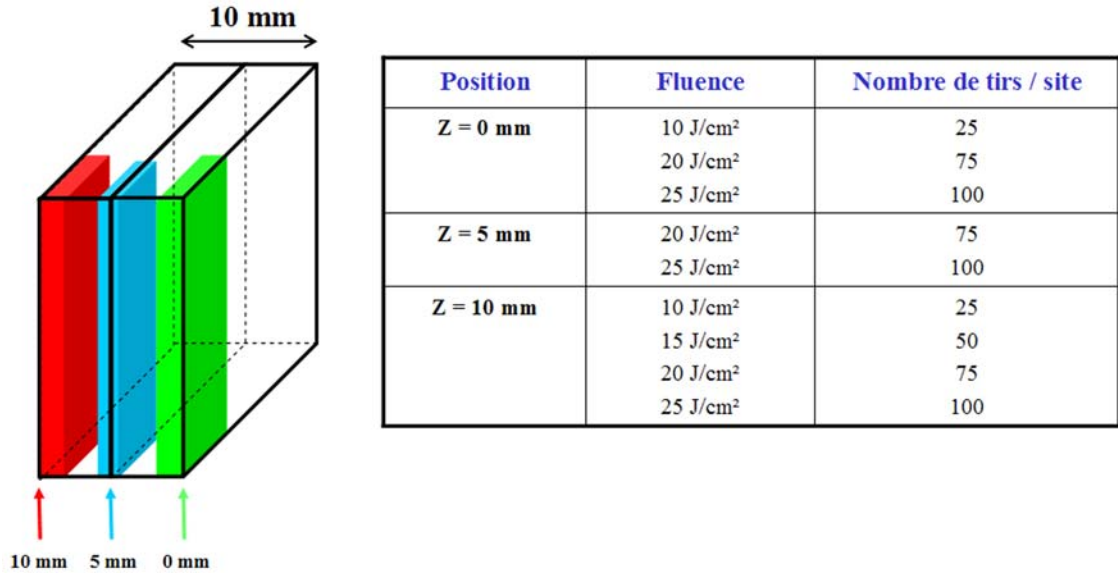


FIG. 6.24 – Procédure de conditionnement excimère en 3 plans d'un cristal de KDP

## Résultats Expérimentaux

Dans le cas précis où seuls trois plans distincts ont été conditionnés, l'utilisation d'un faisceau collimaté pour évaluer le gain de conditionnement n'est pas judicieux. En effet, une irradiation en faisceau parallèle aurait pour conséquence un endommagement du matériau dans les zones les plus fragiles, à savoir les régions situées entre les plans de conditionnements là où aucune modification du matériau a été réalisée. Dans ces conditions il serait alors impossible de mettre en avant un gain de conditionnement. La seule solution pour détecter d'éventuelles améliorations réside dans l'utilisation d'un faisceau laser fortement focalisé afin de réaliser une inspection résolue en profondeur de la tenue au flux du matériau. Le dispositif développé à l'Institut Fresnel est donc totalement adaptée à cette étude. En effet, l'utilisation d'un faisceau UV de  $8 \mu\text{m}$  (à  $1/e^2$ ) au point de focalisation permet de réduire considérablement la profondeur de champ du faisceau d'irradiation (de l'ordre de quelques centaines de microns) et de tester de façon indépendante les différents plans du matériau. Nous avons donc réalisé des mesures de tenue au flux en mode 1:1 à 355 nm à différentes profondeurs de l'échantillon KDP traité afin de suivre l'évolution des probabilités d'endommagement suivant les zones (conditionnées ou non).

–  **$Z = 0$  mm:**

Les mesures de probabilité d'endommagement réalisées en surface (zone conditionnée ou non) ne sont pas représentatives. En effet, dans le cas des cristaux de KDP obtenus par croissance rapide, les résultats publiés montrent que les endommagements de volume apparaissent pour des fluences plus faibles que celles nécessaires aux endommagements de surface [131]. Or ici, les courbes de probabilité d'endommagement semblent être inversées (figure 6.25). Ce phénomène doit s'expliquer par les conditions de stockage du cristal. L'humidité ambiante modifie de façon irréversible sa surface (cf. annexe A) et annihile toute possibilité de détecter un gain de conditionnement lors des tests de tenue au flux. Au vu de ces résultats, il semble donc important de garder une atmosphère contrôlée (humidité  $< 50\%$ ) tout au long de la chaîne de traitement (conditionnement, transport et stockage des optiques, tests de tenue au flux).

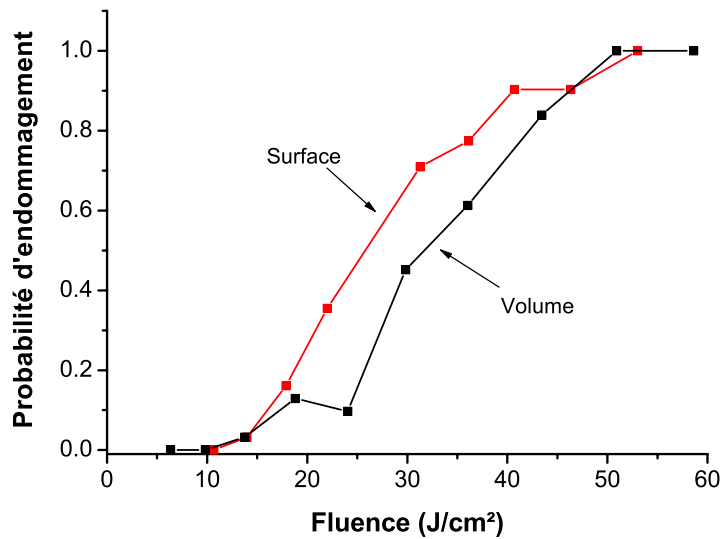


FIG. 6.25 – Comparaison des probabilités d'endommagement obtenues en surface et en volume d'une zone non-conditionnée

–  **$0$  mm  $< Z < 5$  mm:**

Pour les tests de tenue au flux réalisés dans la zone comprise entre les deux plans de conditionnement ( $z=0$ mm et  $z=5$ mm), les probabilités d'endommagement obtenues sont identiques à celles mesurées dans une zone vierge

de toute pré-irradiation. Ceci est en accord avec l'absence d'irradiation laser significative durant le processus de conditionnement.

– **Z = 5 mm:**

Dans cette zone où la pré-irradiation laser a été la plus forte (point de focalisation du laser excimère), la comparaison des courbes de probabilité d'endommagement met en évidence une nette amélioration de la tenue au flux laser du matériau après conditionnement. La figure 6.26 compare les résultats obtenus à cette profondeur dans une zone conditionnée et non conditionnée.

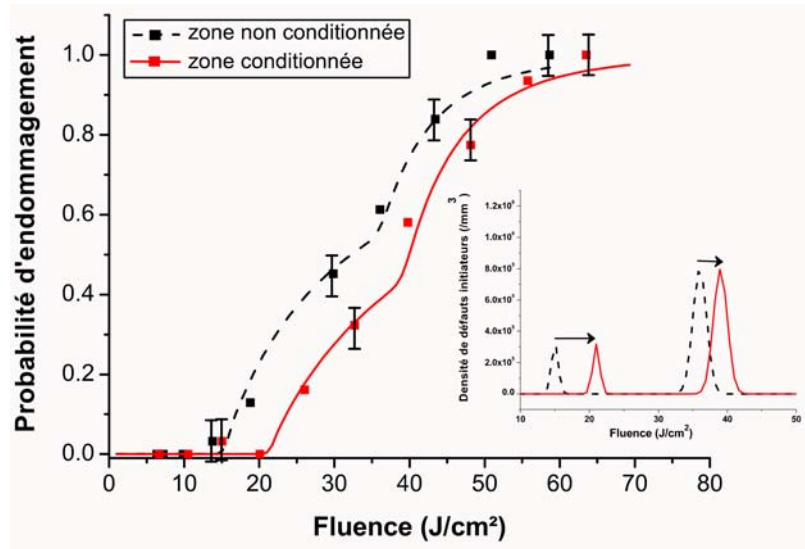


FIG. 6.26 – Probabilités d'endommagement en  $z=5\text{mm}$  mesurées dans la zone conditionnée et dans une zone vierge

Le procédé de conditionnement améliore de façon significative la tenue au flux de cette région. Ainsi, après traitement le seuil bas d'endommagement de cette zone passe de  $15\text{ J/cm}^2$  à plus de  $20\text{ J/cm}^2$ . Pour les fluences supérieures, la densité de dommages pouvant apparaître au cours de l'irradiation diminue elle aussi. La pré-irradiation laser a pour conséquence un décalage du seuil de claquage des défauts vers les plus hautes fluences. Le gain de conditionnement calculé ici atteint environ 20 %.

Des mesures similaires ont été réalisées pour différentes profondeurs. Dans chaque plan, le gain de conditionnement est calculé puis reporté sur la figure 6.27.



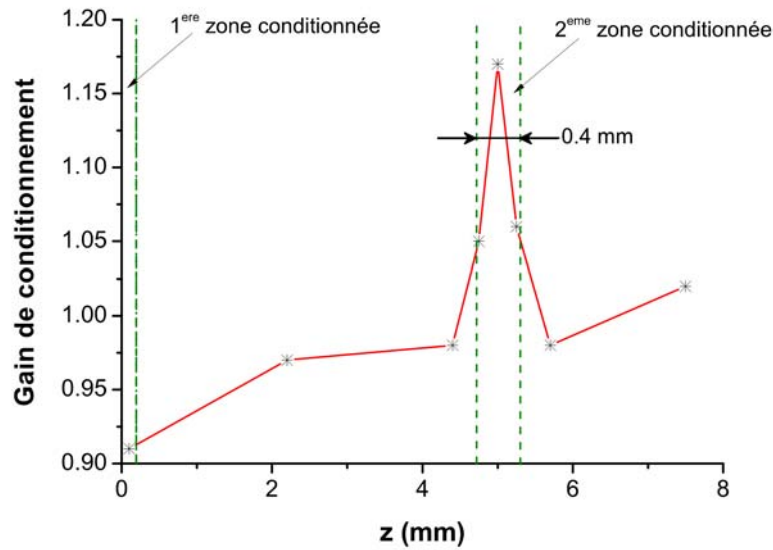


FIG. 6.27 – Gain de conditionnement calculé pour les différentes profondeurs de test

## Bilan

Plusieurs points importants ressortent de cette étude de conditionnement des cristaux de KDP par laser excimère:

- Le gain de conditionnement attendu en  $z=0$  mm n'a pas pu être mis en évidence ici à cause de problèmes de stockage des échantillons au cours des différentes étapes du conditionnement.
- Le gain de conditionnement significatif obtenu dans le plan médian ( $\sim 20\%$ ) valide donc le procédé de conditionnement utilisé ici.
- Dans les conditions actuelles de conditionnement, la zone dans laquelle l'amélioration est effective reste bien évidemment limitée. On retrouve expérimentalement une amélioration de la tenue au flux ( $g>1$ ) dans une zone équivalente à la profondeur de champ du laser excimère utilisé ( $\sim 0.4$  mm).

Afin d'améliorer la tenue au flux du composant tout entier, différentes méthodes sont actuellement à l'étude:

- (1) La plus simple consiste à irradier le composant plan par plan afin d'améliorer successivement la tenue au flux des différentes régions du matériau. Notons que ce type de procédé est rendu possible avec un laser excimère "top-hat" du fait de sa vitesse de pré-irradiation. Cette technique réali-

sée par le CEA/Le Ripault a d'ailleurs été validée en réalisant des tests de tenue au flux laser en faisceau parallèles sur l'installation LUTIN du CEA/CESTA (tableau 6.8). Comme attendu, le gain de conditionnement ainsi mesuré augmente avec le nombre de plans pré-irradiés.

Nombre de plans conditionnés	Fluence cumulée	Gain
1	2450 $J/cm^2$	7%
2	6500 $J/cm^2$	10 %
3	13250 $J/cm^2$	13 %

TAB. 6.8 – *Gain de conditionnement global en fonction du nombre de plans conditionnés (tests réalisés avec un faisceau laser (Nd:YAG, 355 nm, 2,5 ns) collimaté (0.5 mm à  $1/e^2$ )*

(2) La seconde possibilité consiste à modifier la mise en forme du faisceau excimère afin d'augmenter sa profondeur de champ. L'utilisation d'un faisceau collimaté permettrait ainsi de réduire le traitement à un seul plan englobant tout le composant à traiter.

### 6.5.5 Bilan sur les techniques de conditionnement du KDP

Les résultats présentés ici permettent dans les deux cas de valider les procédures de conditionnement laser choisies. En effet que ce soit avec un laser Nd:YAG opérant à 355 nm ou une source excimère à 351 nm, nous obtenons des gains de conditionnement dans les zones pré-irradiées de l'ordre de 20 %. Une amélioration de ce gain de conditionnement passe par une augmentation de l'énergie déposée au cours de la pré-irradiation. Pour cela il faut envisager une augmentation du nombre de passages successifs et une meilleure mise en forme des faisceaux de pré-irradiation. Dans le cas du conditionnement par laser Nd:YAG, nous avons pu montrer que l'amélioration de la tenue au flux pouvait se faire sur le composant global alors que dans le cas excimère où la profondeur de champ est limitée par la mise en forme du faisceau, seul un plan précis pouvait présenter un gain de conditionnement suffisant. Dans ce dernier cas, cette amélioration localisée ne permet pas d'augmenter la tenue au flux du composant. Néanmoins, la rapidité de conditionnement propre au système excimère permet de contourner cette difficulté en effectuant un conditionnement "multi-plans", voire un conditionnement sélectif, spécifique aux zones les plus fragiles en terme de tenue au flux laser. Des expériences complémentaires quant à l'effet de la durée d'impulsion sur le gain de conditionnement restent encore à mettre en oeuvre.

## 6.6 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons tout d'abord étudié de façon exhaustive, le phénomène de fatigue pouvant apparaître lors dans la silice lors d'une sollicitation en tirs lasers répétés. L'influence de la longueur d'onde, du nombre de tir et de la fréquence de répétition a été démontrée. Dans ces conditions, nous avons souligné l'importance de définir pour chaque utilisation un seuil d'endommagement fonctionnel du matériau. Des résultats similaires ont été validés dans le cas des cristaux de KDP.

Nous avons ensuite exploré les techniques de conditionnement de la silice à 355 nm. L'amélioration de la tenue au flux de la surface des optiques de haute qualité est difficile à mettre en évidence. Néanmoins, l'utilisation d'un faisceau d'irradiation large nous a permis de valider le protocole d'élimination des contaminants de surface à l'aide d'une pré-irradiation UV.

Finalement, la faisabilité du conditionnement du KDP à l'aide de lasers UV (Nd:YAG et excimère) a été démontrée. Les conditions expérimentales nécessaires à l'amélioration de la tenue au flux volumique ont été étudiées et optimisées.



# Conclusion et perspectives

L'objectif de cette thèse était d'analyser les phénomènes physiques à l'origine de l'endommagement des composants optiques utilisés dans les lasers de puissance dans le but d'améliorer leur tenue au flux. Cette étude a été réalisée à partir d'outils expérimentaux et théoriques développés depuis plusieurs années à l'Institut Fresnel au sein de l'équipe Milieux Aléatoires et Photonique de Puissance.

De nombreux résultats allant de la mise en évidence des centres précurseurs de l'endommagement laser jusqu'à l'étude de leur comportement en fonction de l'irradiation nous ont permis de définir des procédures de conditionnement laser capables d'améliorer sensiblement la tenue au flux dans l'UV de matériaux tels que la silice et le KDP. Notons que l'ensemble de ce travail s'est inscrit dans une collaboration entre l'Institut Fresnel et le CEA/DAM. Le choix des matériaux testés ainsi que des longueurs d'onde d'irradiation a donc été fortement conditionné par les problèmes rencontrés actuellement en fin de chaîne de la Ligne d'Intégration Laser, prototype à l'échelle 1 du futur laser Megajoule.

## **(1) : Mise en évidence de l'origine de l'endommagement laser**

L'hypothèse selon laquelle l'endommagement laser s'initie au niveau de centres précurseurs de taille nanométrique a été validée expérimentalement de plusieurs façons. L'étude par microscopie à force atomique des endommagements créés en surface d'une monocouche de  $SiO_2$  illustre la corrélation qui peut exister entre la densité de dommages et la densité de défauts initiateurs déduite du modèle statistique. D'autre part, l'étude paramétrique sur l'évolution des courbes de probabilité d'endommagement en fonction de la taille du faisceau d'irradiation sur différents composants (silice et KDP) a permis de valider quantitativement cette notion d'endommagement initié par des défauts fragilisant le matériau.

Dans le cas des endommagements de surface pouvant apparaître lors de l'irradiation d'une lame de silice à 355 nm, nous avons pu réaliser une forte corrélation entre les défauts responsables de ces dommages et les impuretés présentes en suspension dans les liquides de polissage. Ayant ainsi identifié l'origine des centres initiateurs de l'endommagement en surface, il reste maintenant à agir sur le procédé de polissage lui-même afin d'optimiser les étapes les plus pénalisantes pour la tenue au flux laser sans pour autant modifier les spécifications optiques du

composant final.

## **(2): Compréhension des mécanismes initiateurs de l'endommagement laser**

Le développement d'un module haute résolution sur le microscope photothermique déjà développé à l'Institut Fresnel permet de détecter automatiquement et de façon non destructive les défauts absorbants pouvant être à l'origine de l'endommagement laser. La configuration choisie (faisceaux pompe et sonde colinéaires et fortement focalisés) permet de réaliser une détection en trois dimensions afin d'étudier séparément la contribution de la surface et du volume. Actuellement, il est possible de détecter des inclusions métalliques d'or d'une cinquantaine de nanomètres de diamètre. Ceci reste pour l'instant trop peu sensible pour la détection des défauts absorbants réellement présents dans les meilleures silices et dont la taille ne dépasse pas quelques nanomètres. Néanmoins, il semble que nous avons atteint ici la limite de détectivité du microscope photothermique dans sa configuration actuelle. L'utilisation d'un faisceau pompe UV de plus petite taille est maintenant la seule solution afin d'augmenter de façon significative le pouvoir de résolution.

Le couplage de ce dispositif de détection à un laser d'irradiation nous a permis d'étudier in-situ l'évolution de défauts absorbants soumis à des irradiations laser sous seuil d'endommagement. Deux types de contaminants ont été étudiés. Afin de comprendre au mieux l'évolution de ces défauts sous irradiation laser, nous avons fait le choix d'effectuer ces études sur des billes d'or dont les propriétés thermomécaniques sont parfaitement connues. Expérimentalement, alors qu'aucun endommagement n'est visible en surface, la microscopie photothermique a montré que les défauts se modifient de façon irréversible pour des fluences dix fois inférieures au seuil d'endommagement du matériau. Des simulations réalisées en collaboration avec le CEA/DIF montrent en particulier que les premières modifications détectables (étape de pré-endommagement) sont directement liées à la fusion du métal. Pour des énergies plus élevées, la température et la pression au voisinage du défaut atteignent des valeurs considérables pouvant entraîner des modifications irréversibles du matériau hôte. Dans le cas d'inclusions d'or de 3 nm, nous avons pu montrer que lorsque la fluence d'irradiation en tirs multiples se rapproche du seuil d'endommagement de la surface, la silice environnante peut devenir fortement absorbante ( $\times 1000$ ) et joue à son tour le rôle d'initiateur de l'endommagement laser pour les tirs suivants.

## **(3): Amélioration de la tenue au flux laser des matériaux optiques**

L'étude des mécanismes d'initiation de l'endommagement laser sur des billes d'or nous a montré que dans certains cas, il était possible grâce à une irradiation sous seuil d'endommagement de faire disparaître le défaut sans pour autant mo-

difier le matériau hôte. Ceci constitue un exemple de conditionnement laser des défauts.

Afin de définir des procédures de conditionnement optimales, nous avons réalisé une étude préliminaire sur la fatigue des matériaux optiques soumis à des tirs cumulés. Dans le cas de la silice, il apparaît que l'accumulation de tirs lasers à basse fluence a tendance à fragiliser le matériau. Lors d'une irradiation en volume à 355 nm, il apparaît même que l'accumulation de tirs se traduise par la création de nouveaux défauts encore plus pénalisants pour la tenue au flux laser. D'autre part, dans le cas d'une irradiation à 355 nm de la surface, l'accumulation de tirs ne semble avoir que très peu d'effets sur sa tenue au flux. Dans le cas des cristaux de KDP, les résultats montrent que le matériau volumique n'est pas significativement fragilisé lorsqu'il est soumis à des tirs répétés à 355 nm. L'ensemble de ces résultats montrent donc qu'il est nécessaire de définir pour chaque composant un seuil fonctionnel d'endommagement en fonction de l'application afin de garantir la meilleure tenue au flux laser possible.

Nous avons donc ensuite étudié des procédures de conditionnement laser pour la silice et le KDP basées sur des pré-irradiations UV. Dans le cas de la silice, les résultats ont montré une amélioration de la tenue au flux de la surface pouvant être interprétée comme une élimination par irradiation laser des contaminants. Pour les cristaux de KDP, deux techniques de conditionnement laser ont été testées et montrent toutes les deux des résultats encourageants puisque dans les deux cas une amélioration de 20% de la tenue au flux laser a été constatée expérimentalement. Une optimisation des procédures doit être néanmoins réalisée afin d'augmenter le gain de conditionnement et ainsi atteindre les spécifications requises pour les lasers de puissance.





# Annexe A

## Propriétés physiques et optiques des matériaux étudiés

### A.1 Silice Suprasil / Silice Herasil (Heraeus)

La silice **Suprasil** (I, II et III) est une silice synthétique réalisée par hydrolyse de tetrachlorosilane ( $SiCl_4$ ) selon la réaction chimique suivante:



Dans le cas des verres de type **Herasil**, la silice est obtenue uniquement par fusion de quartz naturel dans un four électrique.

Cette différence de fabrication se traduit ensuite par un écart important de concentration d'impuretés dans le matériau massif. Le tableau A.1 regroupe les estimations "fabricant" (Heraeus) relatives aux impuretés métalliques et alcalines.

Impuretés	Suprasil (ppm)	Herasil (ppm)
Al = Aluminium	$\leq 0.010$	10
Ca = Calcium	$\leq 0.015$	1
Cr = Chrome	$\leq 0.001$	0.1
Cu = Cuivre	$\leq 0.003$	0.1
Fe = Fer	$\leq 0.005$	0.2
K = Potassium	$\leq 0.010$	0.1
Li = Lithium	$\leq 0.001$	1
Mg = Magnesium	$\leq 0.005$	0.1
Na = Sodium	$\leq 0.010$	1
Ti = Titane	$\leq 0.005$	0.1

TAB. A.1 – *Impuretés présentes dans les lames de silice (source: Heraeus)*

Ces différences importantes ont des répercussions directes sur les spectres de transmission et d'absorption de ces verres (figures A.1 à A.3). En particulier

dans la gamme de longueurs d'onde UV, ces écarts d'absorption sont à relier aux variations importantes de tenue au flux laser constatées expérimentalement.

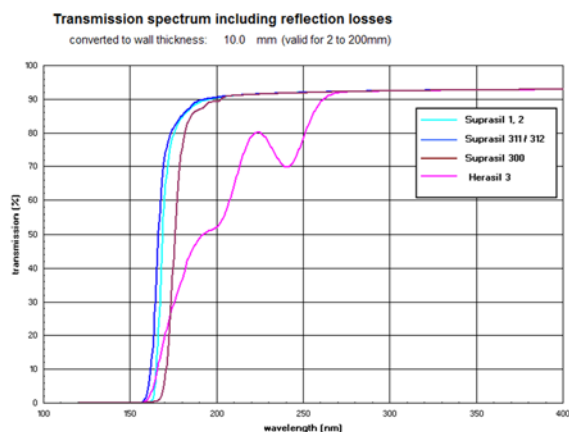


FIG. A.1 – *Spectre de transmission UV de différents verres Heraeus*

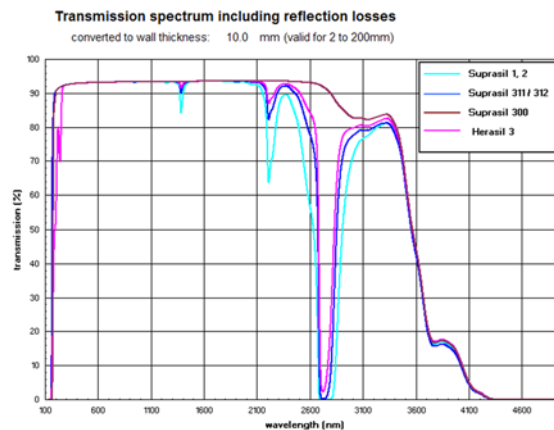


FIG. A.2 – *Spectre de transmission IR de différents verres Heraeus*

Pour un rayonnement UV (typiquement 355 nm), la silice Suprasil semble par conséquent être la plus résistante en terme de tenue au flux laser. Notons tout de même que d'autres fabricants développent des silices UV de bonne qualité. Nous pouvons citer entre autre **Corning** ou **Schott** (Schott Lithotech©).

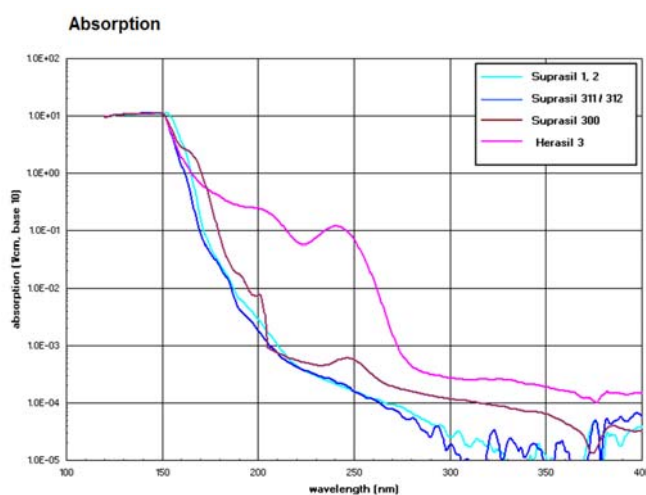


FIG. A.3 – *Spectre d'absorption UV de différents verres Heraeus*

## A.2 KTP et LBO (Cristal Laser)

### A.2.1 KTP

Les principales applications des cristaux de KTP sont le doublage de fréquence dans le visible (SHG) et comme oscillateur paramétrique optique (OPO) dans les lasers IR accordables.

Formule chimique	$KTiOPO_4$
Structure cristalline	Orthorhombique
Symétrie	mm2
Hygroscopie	nulle
Densité ( $g/cm^3$ )	3.03
Conductivité thermique (W/cm K)	$k_1 = 2.010^{-2}$ $k_2 = 3.010^{-2}$ $k_3 = 3.310^{-2}$
Point de fusion (K)	$1453 \pm 10$
Transition ferroélectrique (K)	$1195 \pm 40$
Absorption résiduelle ( $cm^{-1}$ ) à 1064 nm	$< 0.05$
Indice de réfraction à 1064 nm	$n_x = 1.7403$ $n_y = 1.7478$ $n_z = 1.8296$
Accord de phase (SHG 1064 nm) Orientation $\theta$ (deg)	23.5

TAB. A.2 – Propriétés des cristaux de KTP (source: Cristal Laser)

### A.2.2 LBO

Les cristaux de LBO peuvent être utilisés pour de la génération de second harmonique en remplacement des cristaux de KTP, mais ils servent également à la génération de sommes de fréquences (SFG).

Formule chimique	$LiB_3O_5$
Structure cristalline	Orthorhombique
Symétrie	mm2
Hygroscopie	faible
Densité ( $g/cm^3$ )	2.47
Point de fusion (K)	$1109 \pm 10$
Absorption résiduelle ( $cm^{-1}$ ) à 1064 nm	0.01
Indice de réfraction à 1064 nm	$n_x = 1.565$ $n_y = 1.59$ $n_z = 1.605$
Accord de phase (1064 nm)	11.6 (SHG)
Orientation $\theta$ (deg)	38.1 (THG)

TAB. A.3 – *Propriétés des cristaux de LBO (source: Cristal Laser)*

### A.3 KDP et DKDP

Les cristaux de KDP et DKDP sont utilisés pour la génération de second harmonique (SHG) et de troisième harmonique (THG). Leur fabrication est obtenue à partir de la croissance d'un germe de ce cristal. Notons que différents types de croissance existent. D'une part, une croissance dite "lente" qui fournit des cristaux au bout d'une dizaine de mois et d'autre part une croissance "rapide" permettant d'obtenir des cristaux de grande taille en quelques mois seulement. Dans le contexte de notre étude, seuls des cristaux obtenus par croissance rapide ont été testés en tenue au flux laser (collaboration Institut Fresnel - CEA/DAM).

Cristal	KDP	DKDP
Formule chimique	$KH_2PO_4$	$KD_2PO_4$
Symétrie	42 m	42 m
Hygroscopie	haute	haute
Densité ( $g/cm^2$ )	2.332	2.355
Conductivité thermique (W/cm K)	$k_{11} = 1.910^{-2}$	$k_{11} = 1.910^{-2}$ $k_{33} = 2.110^{-2}$
Absorption résiduelle ( $cm^{-1}$ ) à 1064 nm	0.04	0.005
Indice de réfraction à 1064 nm	$n_o = 1.4938$ $n_e = 1.4539$	$n_o = 1.4931$ $n_e = 1.4582$
Accord de phase (SHG 1064 nm) Orientation $\theta$ (deg)	41.2 (I) / 59.1 (II)	36.6 (I) / 53.7 (II)

TAB. A.4 – Propriétés générales des cristaux de KDP et DKDP (source: BFI Optilas)

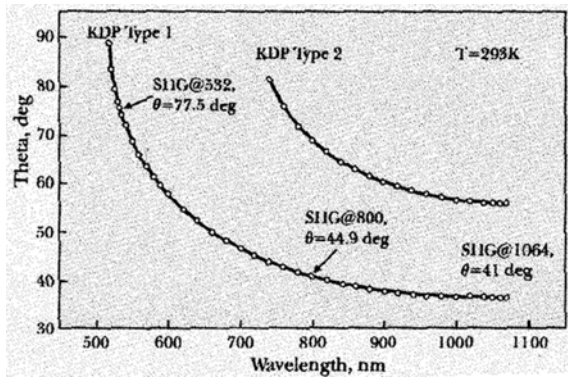


FIG. A.4 – Accord de phase pour la génération du second harmonique à partir d'un cristal de KDP

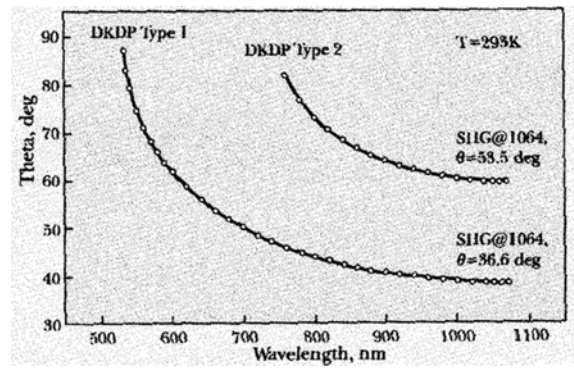


FIG. A.5 – Accord de phase pour la génération du second harmonique à partir d'un cristal de DKDP



# Bibliographie

- [1] P. Volto. *Etude de l'endommagement laser dans les couches minces optiques*. PhD thesis, Paul Cezanne Aix-Marseille III, 1998.
- [2] A. Gatto. *Défauts locaux absorbants et diffusants: rôle et évolution dans l'irradiation, corrélation, étude multi-échelles*. PhD thesis, Paul Cezanne Aix-Marseille III, 1999.
- [3] L. Gallais. *Endommagement laser dans les composants optiques: Metrologie, annalyse statistique et photo-induite des sites initiateurs*. PhD thesis, Paul Cezanne Aix-Marseille III, 2002.
- [4] A. During. *Microscopie photothermique et endommagement laser*. PhD thesis, Université Paul Cezanne Aix-Marseille III, 2002.
- [5] J. P. Chambaret, C. Le Blanc, G. Cheriaux, P. Curley, G. Darpentigny, P. Rousseau, G. Hamoniaux, A. Antonetti, and F. Salin. Generation of 25-tw, 32-fs pulses at 10 hz. *Optics letters*, 21(13):1927–1930, 1996.
- [6] W.W. Duley. Co<sub>2</sub> laser: effects and applications. *Academic Press*, 1976.
- [7] D. Pantelis. Laser de puissance: interaction, traitement, utilisation. *Techniques de l'Ingénieur*, A 1095, 2005.
- [8] H.K. Tonshof. Diode laser for material processing. *Journal de Physique IV*, 4:04–59, 1994.
- [9] P. Laurens, C. Dubouchet, and D. Kechmair. Application des lasers aux traitements de surface. *Techniques de l'Ingénieur*, M 1 643, 2005.
- [10] M.C. Gower. Industrial applications of laser micro-machining. *Optics Express*, 7(2):56–57, 2000.
- [11] L. Herbst, I. Klaft, T. Wenzel, and U. Rebhan. High-repetition-rate excimer laser for micromachining. *Proceedings of the SPIE The International Society for Optical Engineering*, 4971:87–95, 2003.
- [12] W.M. Steen. Laser material processing - an overview. *Journal of Optic A: Pure Applied Optic*, 5:S3–S7, 2003.
- [13] C. Fenic, R. Dabu, A. Strantan, C. Blanaru, C. Ungureanu, and C. Luculescu. Premiminray studies of material surface cleaning with a multi-pluse passively q-switched nd:yag laser. *Optics and Laser Technology*, 36:125–130, 2004.

- [14] M. Sentis, P. Delaporte, M. Gastau, W. Marine, and O. Uteza. Nettoyage de surfaces de grandes dimensions par laser à excimères. *Journal de Physique IV*, 11(Pr7):127, 2001.
- [15] P. Delaporte, M. Gastaud, W. Marine, M. Sentis, O. Uteza, P. Thouvenot, J.L. Alcaraz, J.M. Le Samedy, and D. Blin. Dry excimer laser cleaning applied to nuclear decontamination. *Applied Surface Science*, 208-209:298–305, 2003.
- [16] A. Pereira, P. Delaporte, M. Sentis, A. Cros, W. Marine, A. Basillais, A.L. Thomann, C. Leborgne, N. Semmar, P. Andreazza, and T. Sauvage. Laser treatment of a steel surface in ambient air. *Thin solid films*, 453-454:15–21, 2004.
- [17] J.M. Lee and K. Watkins. Laser removal of oxides and particles from copper surfaces for microelectronic fabrication. *Optics Express*, 7(2):68–76, 2000.
- [18] R.S. Taylor, C. Hnatousky, E. Simova, D.M. Rayner, V.R. Bhardwaj, and P.B. Corkum. Femtosecond laser fabrication of nanostructures in silica glass. *Optics Letters*, 28(12):1043–1045, 2003.
- [19] M.C. Phan Huy, G. Laffont, V. Dewynter-Marty1, P. Ferdinand, P. Roy, J-M. Blondy, D. Pagnoux, and B. Dussardier andt W. Blanc. Inscription de transducteurs à réseaux de bragg dans des fibres microstructurées pour des applications en réfractométrie. *23eme Journées Nationales d’Optique Guidée*, 2004.
- [20] D. Albagli, M. Dark, L.T. Perelman, C. Von Rosenberg, I. Itzkan, and M.S. Feld. Photochemical basis of laser ablation of biological tissue. *Optics Letters*, 19(21):1684, 1994.
- [21] S. Konorov, V. Mitrokin, A. Fedotov, and D. Sidorov. Laser ablation of dental tissues with picosecond pulses at 1.064  $\mu\text{m}$  transmitted through a hollow core photonic crystal fiber. *Applied Optics*, 43(11):2251, 2003.
- [22] Norme ISO 11254. Determination of laser-induced threshold of optical surfaces - Part 1: 1-on-1, 2000.
- [23] Norme ISO 11254. Determination of laser-induced threshold of optical surfaces - Part 2: S-on-1, 2000.
- [24] L.D. Merkle, N. Koumvakalis, and M. Baas. Laser-induced bulk damage in  $\text{SiO}_2$  at 1.064, 0.532 and 0.355  $\mu\text{m}$ . *J. Appl. Phys*, 55(3):772–775, 1983.
- [25] N. Kuzuu, K. Yoshida, H. Yoshida, T. Kamimura, and N. Kamisugi. Laser-induced bulk damage in various types of vitreous silica at 1064, 532, 355 and 266 nm: evidence of different damage mechanisms between 266 nm and longer wavelengths. *Applied Optics*, 38(12):2510–2515, 1999.
- [26] J.W. Arenberg. Extrapolation of the probability of survival of a large area optic based on a small sample. *Proceedings of the SPIE The International Society for Optical Engineering*, 4347:336–342, 2001.
- [27] R.M. Oconnell. Onset threshold analysis of defect-driven surface and bulk laser damage. *Applied Optics*, 31(21):4143–4153, 1992.



- [28] H. Bercegol. Statistical distribution of laser damage and spatial scaling law for a model with multiple defects cooperation in damage. *Proceedings of the SPIE The International Society for Optical Engineering*, 3902:339–48, 2000.
- [29] J.Y. Natoli, L. Gallais, H. Akhouayri, and C. Amra. Laser-induced damage of materials in bulk, thin-film, and liquid forms. *Applied Optics*, 41(16):3156–3166, 2002.
- [30] H. Krol, L. Gallais, B. Bertussi, J-Y. Natoli, C. Grèzes-Besset, M. Commandré, and C. Amra. Threshold distribution determination of laser-induced damage precursors in optical coatings and substrates. *Proceedings of the SPIE The International Society for Optical Engineering*, A paraitre, 2005.
- [31] B.C. Stuart, M.D. Feit, A.M. Rubenchik, B.W. Shore, and M.D. Perry. Laser-induced damage in dielectrics with nanosecond to subpicosecond pulses. *Physical Review Letters*, 74(12):2248–2251, 1995.
- [32] A.E. Chmel. Fatigue laser-induced damage in transparent materials. *Materials Science and Engineering B Solid State Materials for Advanced Technology*, B49(3):175–90, 1997.
- [33] L. Gallais and J.Y. Natoli. Optimized metrology for laser-damage measurement: application to multiparameter study. *Applied Optics*, 42(6):960–971, 2003.
- [34] L. Gallais, P. Voarino, and C. Amra. Optical measurement of size and complex index of laser-damage precursors: the inverse problem. *Journal Of The Optical Society Of America B-Optical Physics*, 21(5):1073–1080, 2004.
- [35] C. Walther, C. Bitea, W. Hauser, J.I. Kim, and F.J. Scherbaum. Laser-induced breakdown detection for the assessment of colloid mediated radionuclide migration. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 1995(3-4):374–388, 2002.
- [36] A.M. Rubenchik and M.D. Feit. Initiation, growth and mitigation of uv laser induced damage in fused silica. *Proceedings of the SPIE The International Society for Optical Engineering*, 4679:77–95, 2002.
- [37] N. Bloembergen. Role of cracks, pores, and absorbing inclusions on laser induced damage threshold at surfaces of transparent dielectrics. *Applied Optics*, 12(4):661–4, 1973.
- [38] A. Salleo, F.Y. Genin, J. Yoshiyama, C.J. Stolz, and M.R. Kozlowski. Laser-induced damage of fused silica at 355 nm initiated at scratches. *Proceedings of the SPIE The International Society for Optical Engineering*, 3244:341–7, 1998.
- [39] H. Bercegol, R. Courchinoux, M. Josse, and J.L. Rullier. Observation of laser-induced damage on fused silica initiated by scratches. *Proceedings of the SPIE The International Society for Optical Engineering*, 5647:78–85, 2005.

- 
- [40] L. Skuja, H. Hosono, and M. Hirano. Laser-induced color centers in silica. *Applied Physics Letters*, 52(11):857–9, 1988.
  - [41] S.G. Demos, M.C. Staggs, K. Minoshima, and J. Fujimoto. Characterization of laser-induced damage sites in optical components. *Optics Express*, 10(25):1444–1450, 2002.
  - [42] A.S. Gouillon. *Etude de la transmission d'un faisceau laser de grande puissance moyenne par fibre optique. Application à la décontamination de surface*. PhD thesis, Université Paul Cezanne Aix-Marseille III, 1998.
  - [43] O.M. Efimov, K. Gabel, S.V. Garnov, L.B. Glebov, S. Grantham, M. Richardson, and M.J. Soileau. Color-center generation in silicate glasses exposed to infrared femtosecond pulses. *Journal Of The Optical Society Of America B-Optical Physics*, 15(1):193–199, 1998.
  - [44] G. Philipps and J. Vater. 1.06  $\mu\text{m}$  absorption caused by stable color centers in flash lamp pumped nd:yag laser rod. *Applied Optics*, 32(18):3210–3216, 1993.
  - [45] S.M. Avanesyan, S. Orlando, S.C. Langford, and J.T. Dickinson. Through a glass darkly: point defect production by ultra fast laser irradiation of alkali-containing silica glasses and alkali halide single crystals. *Proceedings of the SPIE The International Society for Optical Engineering*, 5647:501–511, 2005.
  - [46] Lord Rayleigh. Scientific papers. *University Press (Cambridge)*, 4:54, 1903.
  - [47] L. Dettman. Estimation of subsurface damage depth by dimpling. *Science Optical Finishing, Technical Digest of OSA*, 1990.
  - [48] L. Nevot and P. Croce. Caractérisation des surfaces par réflexion rasante de rayons x. application à l'étude du polissage de quelques verres silicates. *Revue Phys. Appl.*, 14:761–779, 1980.
  - [49] J. Neauport, D. Valla, J. Duchesne, P. Bouchut, L. Lamaignière, J. Bigarré, and N. Daurrios. Building high damage threshold surfaces at 351 nm. *Proceedings of the SPIE The International Society for Optical Engineering*, 5252:131–139, 2004.
  - [50] R.W. Hopper and D.R. Uhlmann. Mechanism of inclusion damage in laser glass. *Journal of Applied Physics*, 41:4023–4037, 1970.
  - [51] F. Bonneau, P. Combis, J.L. Rullier, J. Vierne, M. Pellin, M. Savina, M. Broyer, E. Cottancin, J. Tuaillon, M. Pellarin, L. Gallais, J.Y. Natoli, M. Perra, H. Bergegol, L. Lamaignere, M. Loiseau, and J.T. Donohue. Study of uv laser interaction with gold nanoparticles embedded in silica. *Applied Physics B Lasers and Optics*, B75(8):803–15, 2002.
  - [52] J.Y. Natoli, L. Gallais, B. Bertussi, A. During, M. Commandre, J.L. Rullier, F. Bonneau, and P. Combis. Localized pulsed laser interaction with sub-micronic gold particles embedded in silica: a method for investigating laser damage initiation. *Optics Express*, 11(7):824–829, 2003.

- [53] F. Bonneau, P. Combis, J.L. Rullier, M. Commandre, A. During, J.Y. Natoli, M.J. Pellin, M.R. Savina, E. Cottancin, and M. Pellarin. Observation by photothermal microscopy of increased silica absorption in laser damage induced by gold nanoparticles. *Applied Physics Letters*, 83(19):3855–3857, 2003.
- [54] S. Palmier, I. Tovenà, R. Courchinoux, M. Josse, J.L. Rullier, B. Bertussi, J.Y. Natoli, L. Servant, and D. Talaga. Laser damage to optical components induced by surface chromium particles. *Proceedings of the SPIE The International Society for Optical Engineering*, 5647:156–164, 2005.
- [55] F.Y. Genin, M.D. Feit, M.R. Kozlowski, A.M. Rubenchik, A. Salleo, and J. Yoshiyama. Rear-surface laser damage on 355-nm silica optics owing to fresnel diffraction on front-surface contamination particles. *Applied Optics*, 39(21):3654–3663, 2000.
- [56] F.Y. Genin, A. Salleo, T.V. Pistor, and L.L. Chase. Role of light intensification by cracks in optical breakdown on surfaces. *Journal of the Optical Society of America A Optics, Image Science and Vision*, 18(10):2607–16, 2001.
- [57] C. Scurlock. A phenomenological study of contamination enhanced laser-induced damage in sealed lasers. *Proceedings of the NASA’s earth science technology conference (<http://www.estd.nasa.gov>)*, 2004.
- [58] G. Guehenneux, M. Veillerot, I. Tovenà, P. Bouchut, and L. Delrive. Evaluation of outgassing contamination effects on optical surfaces of the lil. *Proceedings of the SPIE The International Society for Optical Engineering*, 5647:120–128, 2005.
- [59] M. Poulingue. *Le rôle des nodules dans l’endommagement laser des miroirs à 1.06  $\mu\text{m}$* . PhD thesis, Institut National Polytechnique de Grenoble, 1999.
- [60] M.R. Kozlowski, M. Staggs, M. Balooch, R. Tench, and W. Siekhaus. The surface morphology of as-deposited and laser damaged dielectric mirror coatings studied in situ by atomic force microscope. *Proceedings of the SPIE The International Society for Optical Engineering*, 1556:68–78, 1991.
- [61] M.R. Kozlowski and R. Chow. The role of defects in laser multilayer coatings. *Proceedings of the SPIE The International Society for Optical Engineering*, 2114:640–640, 1994.
- [62] H. Bercegol, L. Lamaignere, B. Le-Garrec, M. Loiseau, and P. Volto. Self-focusing and rear surface damage in a fused silica window at 1064 nm and 355 nm. *Proceedings of the SPIE The International Society for Optical Engineering*, 4932:276–85, 2003.
- [63] J.H. Marburger. Theory of self focusing. *Journal of Quantum Electronics*, 8:586, 1972.
- [64] M.J. Soileau, W.E. Williams, A. Mansour, and E.W. Van Stryland. *Optical Engineering*, 28:1133, 1989.

- [65] C.A. Klein. Corrections for self-focusing in laser-damage experiments. *Journal Of The Optical Society Of America B-Optical Physics*, 10(12):2416–2419, 1993.
- [66] P. Fichet, P. Mauchien, J.F. Wagner, and C. Moulin. Quantitative elemental determination in water and oil by laser induced breakdown spectroscopy. *Analytica chimica acta*, 429:269–278, 2001.
- [67] T. Bundschuh, R. Knopp, and J.I. Kim. Laser-induced breakdown detection (libd) of aquatic colloid with different laser systems. *Colloids and surfaces A: physical and engineering aspects*, 117:45–47, 2001.
- [68] A.A. Oraevsky, S.L. Jacques, and F.K. Tittel. Mechanism of laser ablation on aqueous media irradiated under confined stress conditions. *Journal of Applied Physics*, 78:1281–1290, 1995.
- [69] R.J. Tench, R. Chow, and M.R. Kozlowski. Characterization of defect geometries in multilayer optical coatings. *Journal of Vacuum Science Technology A: Vacuum, Surfaces, and Films*, 12(5):2808–13, 1994.
- [70] S. Papernov, A.W. Schmid, J. Anzelotti, D. Smith, and Z.R. Chrzan. Afm mapped nanoscale absorber-driven laser damage in uv high reflector multilayers. *Proceedings of the SPIE The International Society for Optical Engineering*, 2714:384–394, 1996.
- [71] M. Poulingue, J. Dijon, P. Garrec, and P. Lyan. 1.06  $\mu\text{m}$  laser irradiation on high reflection coatings inside a scanning electron microscope. *Proceedings of the SPIE The International Society for Optical Engineering*, 3578:188–195, 1999.
- [72] J. Dijon, G. Ravel, and B. Andre. Thermomechanical model of mirror laser damage at 1.06  $\mu\text{m}$ . Part II: Flat bottom pits formation. *Proceedings of the SPIE The International Society for Optical Engineering*, 3578:398–407, 1999.
- [73] S. Kassam, A. Duparré, K. Hehl, P. Bussemer, and J. Neubert. Light scattering from the volume of optical thin films: theory and experiment. *Appl. Opt.*, 31:1304–1313, 1992.
- [74] C. Amra. Light scattering from multilayer optics. part a: Investigation tools. *J. Opt. Soc. Am.*, 11:197–210, 1994.
- [75] C. Amra. Light scattering from multilayer optics. part b: Application to experiment. *J. Opt. Soc. Am.*, 11:211–226, 1994.
- [76] K.T. Stevens, N.C. Giles, and L.E. Halliburton. Photoluminescence and micro-raman studies of as-grown and high-temperature-annealed ktiopo4. *Applied Physics Letters*, 68(7):897–899, 1996.
- [77] M.R. Kozlowski, C.L. Battersby, and S.G. Demos. Luminescence investigation of sio/sub 2/ surfaces damaged by 0.35 mm laser illumination. *Proceedings of the SPIE The International Society for Optical Engineering*, 3902:138–44, 2000.

- [78] S.G. Demos, M.C. Nostrand, M.C. Staggs, C.W. Carr, D. Hahn, M.R. Kozlowski, L.M. Sheehan, C.L. Battersby, and A.K. Burnham. Investigation of fluorescence microscopy as a tool for noninvasive detection and imaging of damage precursors at 351 nm. *Proceedings of the SPIE The International Society for Optical Engineering*, 4679:347–59, 2002.
- [79] W. Jackson, N.M. Amer, A.C. Boccara, and D. Fournier. Photothermal deflection spectroscopy and detection. *Appl. Opt.*, 20:1333–1344, 1981.
- [80] J.C. Murphy and L.C. Aamodt. Photothermal spectroscopy using optical beam probing: mirage effect. *J. Appl. Phys.*, 51:4580–4588, 1980.
- [81] E. Welsch and D. Ristau. Photothermal measurements on optical thin-films. *Applied Optics*, 34(31):7239–7253, 1995.
- [82] E. Welsch, K. Ettrich, H. Blaschke, P. ThomsenSchmidt, D. Schafer, and N. Kaiser. Investigation of the absorption induced damage in ultraviolet dielectric thin films. *Optical Engineering*, 36(2):504–514, 1997.
- [83] A.C. Boccara, D. Fournier, W. Jackson, and N.M. Amer. Sensitive photothermal deflection technique for measuring absorption in optically thin media. *Optics Letters*, 5:377–379, 1980.
- [84] M. Commandré and P. Roche. Characterization of optical coatings by photothermal deflection. *Applied Optics*, 35:5012–5034, 1996.
- [85] A. During, C. Fossati, and M. Commandre. Multiwavelength imaging of defects in ultraviolet optical materials. *Applied Optics*, 41(16):3118–3126, 2002.
- [86] C. Gallou, P. Isnard, H. Piombini, and B. Schmitt. Low-loss optical coatings for high power laser systems. *Proceedings of the SPIE The International Society for Optical Engineering*, 1782:416–425, 1993.
- [87] A. Fornier, C. Cordillot, D. Bernardino, O. Lam, A. Roussel, C. Amra, L. Escoubas, G. Albrand, M. Commandre, P. Roche, M. Cathelinaud, and A. Gatto. Characterization of optical coatings: Damage threshold/local absorption correlation. *Proceedings of the SPIE The International Society for Optical Engineering*, 2966:292–305, 1997.
- [88] M. Reichling, A. Bodemann, and N. Kaiser. Defect induced laser damage in oxide multilayer coatings for 248 nm. *Thin Solid Films*, 320(2):264–279, 1998.
- [89] C.J. Stolz, J. Yoshiyama, A. Salleo, Z.L. Wu, J. Green, and R. Krupka. Characterization of nodular and thermal defects in hafnia/silica multilayer coatings using optical, photothermal, and atomic force microscopy. *Proceedings of the SPIE The International Society for Optical Engineering*, 3244:475–83, 1998.
- [90] D. Boyer, P. Tamarat, A. Maali, B. Lounis, and M. Orrit. Photothermal imaging of nanometer-sized metal particles among scatterers. *Science*, 297(5584):1160–3, 2002.

- [91] A. During, C. Fossati, and M. Commandre. Photothermal deflection microscopy for imaging sub-micronic defects in optical materials. *Optics Communications*, 230(4-6):279–286, 2004.
- [92] B. Woods, M. Yan, J. De-Yoreo, M. Kozlowski, H. Radousky, and Z. Wu. Photothermal mapping of defects in the study of bulk damage in kdp. *Proceedings of the SPIE The International Society for Optical Engineering*, 3244:242–8, 1998.
- [93] S. Papernov and A.W. Schmid. Using colloidal gold nanoparticles for studies of laser interaction with defects in thin films. *Proceedings of the SPIE The International Society for Optical Engineering*, 4347:146–54, 2001.
- [94] S. Papernov and A.W. Schmid. Correlations between embedded single gold nanoparticles in sio2 thin film and nanoscale crater formation induced by pulsed-laser radiation. *Journal of Applied Physics*, 92(10):5720–8, 2002.
- [95] S. Papernov and A.W. Schmid. Damage behavior of sio2 thin films containing gold nanoparticles lodged at predetermined distances from the film surface. *Proceedings of the SPIE The International Society for Optical Engineering*, 4932:66–74, 2003.
- [96] P. Combis, F. Bonneau, G. Daval, and L. Lamaignère. Laser-induced damage simulations of absorbing materials under pulsed ir irradiations. *Proceedings of the SPIE The International Society for Optical Engineering*, 3902:317–323, 2000.
- [97] H. Bercegol, F. Bonneau, P. Bouchut, P. Combis, J. Donohue, L. Gallais, L. Lamaignere, C. Le-Diraision, M. Loiseau, J.Y. Natoli, C. Pelle, M. Perra, J.L. Rullier, J. Vierende, and H. Ward. Laser ablation of fused silica induced by gold nanoparticles: comparison of simulations and experiments at  $\lambda = 351$  nm. *Proceedings of the SPIE The International Society for Optical Engineering*, 4760:1055–66, 2002.
- [98] H. Bercegol, F. Bonneau, P. Bouchut, P. Combis, L. Gallais, L. Lamaignere, J.Y. Natoli, J.L. Rullier, and J. Vierende. Comparison of numerical simulations with experiment on generation of craters in silica by a laser. *Proceedings of the SPIE The International Society for Optical Engineering*, 4932:297–308, 2003.
- [99] P. Jonnard, J.P. Morreeuw, and H. Bercegol. Physico-chemical environment of al impurity atoms in amorphous silica. *European Physical Journal, Applied Physics*, 21(2):147–9, 2003.
- [100] P. Jonnard, H. Bercegol, L. Lamaignère, J.P. Morreeuw, J.L. Rullier, E. Cottancin, and M. Pellerin. X-ray spectroscopy study of electronic structure of laser-irradiated au nanoparticles in silica thin film. *Journal of Applied Physics*, A paraître, 2005.
- [101] P. Grua and H. Bercegol. Dynamics of electrons in metallic nanoinclusions interacting with an intense laser beam. *Proceedings of the SPIE The International Society for Optical Engineering*, 4347:579–87, 2001.

- 
- [102] P. Grua, J.P. Morreeuw, and H. Bercegol. Kinetic study of laser damage initiation by creation of an electron plasma from absorbing nanoinclusions. *Proceedings of the SPIE The International Society for Optical Engineering*, 4679:293–302, 2002.
- [103] P. Grua, J.P. Morreeuw, H. Bercegol, G. Jonusauskas, and F. Vallee. Electron kinetics and emission for metal nanoparticles exposed to intense laser pulses. *Physical Review B Condensed Matter and Materials Physics*, 68(3):35424–1–12, 2003.
- [104] F. Quere, P. Grua, H. Bercegol, P. Martin, J.P. Morreeuw, and J.L. Rullier. Interaction of an intense laser field with a dielectric containing metallic nanoparticles. *Applied Physics B Lasers and Optics*, B78(7-8):825–8, 2004.
- [105] P. COMbis, H. Ward, F. Bonneau, J.L. Rullier, and J. Vierne. Etablissement d’une base de données électriques et thermiques pour la silice: Application à la simulation de l’endommagement des verres. *Rapport Interne CEA/DAM*.
- [106] P. Combis and F. Bonneau. Résolution de l’équation de l’helmholtz à l’aide de la théorie de mie généralisée. *Rapport interne CEA/DAM*.
- [107] L. Gallais, J.Y. Natoli, and C. Amra. Statistical study of single and multiple pulse laser-induced damage in glasses. *Optics Express*, 10(25):1465–1474, 2002.
- [108] R.M. Oconnell, T.F. Deaton, and T.T. Salto. Single and multiple shot laser damage properties of commercial grade pmma. *Applied Optics*, 23:682–688, 1984.
- [109] L.D. Merkle, M. Baas, and R.T. Swimm. multiple pulse laser-induced bulk damage in crystalline and fused quartz at 1.064 and 0.532  $\mu\text{m}$ . *Opt. Eng.*, 22:405, 1983.
- [110] P. Whitman, M. Norton, M. Nostrand, W. Molander, A. Nelson, M. Engelhard, D. Gaspar, D. Baer, W. Siekhaus, S. Demos, M. Staggs, and A. Burnham. Performance of bare and sol-gel coated dkd crystal surfaces exposed to multiple 351 nm laser pulses in vacuum and air. *Proceedings of the SPIE The International Society for Optical Engineering*, 4679:257–269, 2002.
- [111] A. Gorshkov, I. Bel’bas, V. Sannikov, and K. Vukolov. Frequency laser damage of mo mirrors. *Fusion Engineering And Design*, 66-8:865–869, 2003.
- [112] S. Laux, H. Bernitzki, M. Klaus, , H. Lauth, and N. Kaiser. Long-time radiation resistant optical coatings for uv excimer laser applications. *Proceedings of the SPIE The International Society for Optical Engineering*, 4347:13–16, 2001.
- [113] D. Kitriotis and L.D. Merkle. Multipulse laser-induced damage phenomena in silicates. *Applied Optic*, 28:949–958, 1989.
- [114] R.J. Landry, E. Snitzer, and R.H. Bartman. Ultraviolet induced transient and stable color centers in self q-switched laser glass. *J. Appl. Phys.*, 42:3827, 1971.

- [115] E. Eva. Non linear absorption phenomena in optical materials for the uv spectral range. *J. Appl. Surface Science*, 109-110:52–57, 1997.
- [116] P. Karlitschek, G. Hillrichs, and K.F. Klein. Influence of hydrogen on the color center formation in optical fibers induced by uv laser radiation. *Optics Communications*, 155:376–397, 1998.
- [117] J.W. Chan, T. Huser, S. Risbud, and D.M. Krol. Structural changes in fused silica after exposure to focused femtosecond laser pluses. *Optics Letters*, 26(21):1726–1728, 2001.
- [118] J. Zhang, P. Herman, C. Lauer, K. Chen, and M. Wei. 157 nm laser-induced modifications of fused silica glasses. *Proceedings of the SPIE The International Society for Optical Engineering*, 4274:125–132, 2001.
- [119] A. Kubota, M.J. Caturla, J.S. Stolken, and M.D. Feit. Densification of fused silica due to shock waves and its implications for 351 nm laser-induced damage. *Optics Express*, 8(11):611–616, 2001.
- [120] V. Liberman, M. Rotschild, J.H.C Selacek, R.S. Uttaro, and A. Grenville. Excimer laser induced densification of fused silica: laser fluence and material grade effects on scaling law. *J. Of Non Crystalline solids*, 244:159–171, 1999.
- [121] N.F. Borrelli, C. Smith, D.C. Allan, and T.P. Seward. Densification of fused silica under 193 nm excitation. *J. Opt. Soc. Am. B*, 14(7):1606–1615, 1997.
- [122] R.E. Schenker and W.G. Oldham. Ultraviolet-induced densification in fused silica. *J. Appl. Phys.*, 82(3):1065–1071, 1997.
- [123] R. Brusasco, B. Penetrante, J. Butler, S. Maricle, and J. Peterson. CO<sub>2</sub> laser polishing for reduction of 351 nm surface damage initiation in fused silica. *Proceedings of the SPIE The International Society for Optical Engineering*, 4679:34–39, 2002.
- [124] R.J. Tench, M.R. Kozlowski, J. Cohen, and R. Chow. Laser damage and conditioning at defects in optical coatings. *Optical Interference Coating OSA Technical Digest*, 1:214, 1995.
- [125] A.B. Papandrew, C.J. Stolz, Z.L. Wu, G.E. Loomis, and S. Falabella. Laser conditioning characterization and damage threshold prediction of hafnia/silica multilayer mirrors by photothermal microscopy. *Proceedings of the SPIE The International Society for Optical Engineering*, 4347:53–61, 2001.
- [126] M.R. Kozlowski, M. Staggs, F. Rainer, and J.H. Stathis. Laser conditioning and electronic defect measurements of  $hfo_2$  and  $sio_2$  thin films. *Proceedings of the SPIE The International Society for Optical Engineering*, 1441:269, 1991.
- [127] M. Staggs, M. Balooch, M.R. Kozlowski, and W.J. Siekhaus. In situ atomic force microscopy of laser conditioned and laser damaged  $hfo_2$ - $sio_2$  dielectric mirror coatings. *Proceedings of the SPIE The International Society for Optical Engineering*, 1624:375, 1992.



- [128] A. Tesar, M. Balooch, R. Tench, C. Stolz, T. Sarginson, and W. Siekhaus. Examination of laser conditioning using atomic force microscopy. *Proceedings of the SPIE The International Society for Optical Engineering*, 1624:398, 1992.
- [129] M.E. Frink, J.W. Arenberg, D.W. Mordaunt, S.C. Seitel, M.T. Babb, and E.A. Teppo. Temporary laser damage threshold enhancement by laser conditioning of antireflection-coated glass. *Applied Physics Letters*, 51(6):415–17, 1987.
- [130] J.W. Arenberg and M.E. Frink. On the role of water in the laser conditioning effect. *Proceedings of the SPIE The International Society for Optical Engineering*, 756:430–439, 1988.
- [131] M. Runkel, K.P. Neeb, M.C. Staggs, J. Auerbach, and A.K. Burnham. Results of raster-scan laser conditioning studies on dkdp triplers using nd:yag and excimer lasers. *Proceedings of the SPIE The International Society for Optical Engineering*, 4679:368–83, 2002.
- [132] J.W. Arenberg and D.W. Mordaunt. Experimental investigation on the role of wavelength in the laser conditioning effect. *Proceedings of the SPIE The International Society for Optical Engineering*, 775:516–519, 1989.
- [133] C. R. Wolfe, M.R. Kozlowski, J.H. Campbell, M. Staggs, and F. Rainier. Permanent laser conditioning of thin film optical materials. *United States Patent*, 5 472 748, 1995.
- [134] K. Fujioka, S. Matsuo, T. Kanabe, H. Fujita, and M. Nakatsuka. Optical properties of rapidly grown kdp crystal improved by thermal conditioning. *Journal Of Crystal Growth*, 181(3):265–271, 1997.
- [135] G. Li, G. Su, X. Zhuang, Z. Li, and Y. He. Rapid growth of kdp crystal with new additive. *Journal of crystal growth*, 269:443–447, 2004.
- [136] L.M. Sheehan, M.R. Kozlowski, F. Rainer, and M. Staggs. Large area conditioning of optics for high power laser systems. *Proceedings of the SPIE The International Society for Optical Engineering*, 2114:559–568, 1994.
- [137] M. Runkel, M. Yan, J.J. DeYoreo, and N.P. Zaitseva. Effect of impurities and stress on the damage distributions of rapidly grown kdp crystals. *Proceedings of the SPIE The International Society for Optical Engineering*, 3244:211–21, 1998.
- [138] M. Runkel, S. Maricle, R. Torres, J. Auerbach, R. Floyd, R. Hawley-Fedder, and A.K. Burnham. The effect of thermal annealing and second harmonic generation on bulk damage performance of rapid-growth kdp type i doublers at 1064 nm. *Proceedings of the SPIE The International Society for Optical Engineering*, 4347:389–99, 2001.
- [139] D. Damiani, H. Piombini, D. Plessis, T. Donval, L. Lamainière, and M. Loiseau. Excimer laser conditioning of kdp: influence of laser parameters and crystal orientation on the laser damage threshold. *Proceedings of the SPIE The International Society for Optical Engineering*, 5647:290–297, 2005.

- [140] P.A. Temple, W.H. Lowdermilk, and D. Milam. Carbon dioxide laser polishing of fused silica surfaces for increased laser damage resistance at 1064 nm. *Applied Optics*, 21:3249–3255, 1982.
- [141] J.E. Peterson, S. M. Maricle, R.M. Brusaco, and B.M. Penetrante. Reduction of damage initiation density in fused silica optics via uv laser conditioning. *United States Patent*, 0046579, 2002.
- [142] P. Bouchut, P. Garrec, and C. Pelle. Wet etching for the mitigation of laser damage growth in fused silica. *Proceedings of the SPIE The International Society for Optical Engineering*, 4932:103–110, 2003.
- [143] T. Kamimura, K. Nakai, Y. Mori, and T. Sasaki. Improvement of laser-induced surface damage in uv optics by ion beam etchnig. *Proceedings of the SPIE The International Society for Optical Engineering*, 3578:277–284, 1999.
- [144] T. Kamimura, S. Akamatsu, H. Horibe, H. Shiba, S. Motokoshi, T. Sakamoto, T. Jitsuno, T. Okamoto, and K. Yoshida. Enhancement of surface-damage resistance by removing subsurface damage in fused silica and its dependence on wavelength. *Japanese Journal Of Applied Physics Part 2-Letters*, 43(9A-B):L1229–L1231, 2004.
- [145] T. Kamimura, Y. Mori, T. Sasaki, H. Yoshida, T. Okamoto, and K. Yoshida. Ion etching of fused silica glasses for high-power lasers. *Japanese Journal Of Applied Physics Part 1*, 37(9A):4840–4841, 1998.
- [146] H. Hu, R. Fan, Z. Tang, Z. Fan, C. Bao, W. Qiu, and Z. Hong. Study of the technology of small spot scanning for laser conditioning of optical coatings at 532 nm. *Chinese Journal of Lasers*, A26(8):763–7, 1999.
- [147] H. Bercegol, A. Boscheron, C. Lepage, E. Mazataud, T. Donval, L. Lamaignere, M. Loiseau, G. Raze, and C. Sudre. Self-focusing and surface damage in fused silica windows of variable thickness with uv nanosecond pulses. *Proceedings of the SPIE The International Society for Optical Engineering*, 5273(1):136–44, 2004.

## **Résumé:**

Cette thèse traite des mécanismes de l'endommagement laser dans les matériaux optiques (silice et KDP) en régime nanoseconde. La compréhension et la maîtrise des phénomènes physiques mis en jeu sont des étapes nécessaires dans le processus d'amélioration de la tenue au flux des composants optiques pour les lasers de puissance.

Tout d'abord, nous validons l'hypothèse de l'existence des centres précurseurs de l'endommagement laser. Nous réalisons en particulier une corrélation entre les défauts responsables de l'endommagement en surface des lames de silice à 355nm et les impuretés nanométriques présentes dans les liquides de polissage.

Ensuite, nous développons un microscope photothermique haute résolution afin de détecter de façon non destructive les nano-défauts absorbants susceptibles d'initier l'endommagement laser dans ces matériaux optiques. Le couplage de ce dispositif à un banc d'endommagement permet d'étudier avec précision l'évolution de défauts modèles (inclusions métalliques) lors d'une irradiation laser. Les données expérimentales sont comparées à des simulations basées sur l'interaction laser matière afin de mettre en évidence les mécanismes physiques intervenant dans le processus de claquage.

Une étude systématique de la " fatigue " des matériaux réels soumis à des tirs répétés permet finalement de définir des procédés de pré-irradiations capables d'améliorer leur tenue au flux : on parle alors de conditionnement laser.

## **Mots clés:**

Endommagement laser, silice, KDP, seuil d'endommagement, sites précurseurs, polissage, mécanismes d'initiation, phénomènes thermiques, microscope photothermique haute-résolution, fatigue, conditionnement laser.

